

INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

(51) International Patent Classification ⁷ :

H01L 51/20

A1

(11) International Publication Number:

WO 00/69002

(43) International Publication Date:

16 November 2000 (16.11.00)

(21) International Application Number: PCT/US00/10392

(22) International Filing Date: 18 April 2000 (18.04.00)

(30) Priority Data:

09/309,846

11 May 1999 (11.05.99)

US

(71) Applicant: THE DOW CHEMICAL COMPANY [US/US];
2030 Dow Center, Midland, MI 48674 (US).(72) Inventors: BERNIUS, Mark, T.; 401 Mayfield Lane, Midland,
MI 48640 (US). WOO, Edmund, P.; 300 Mayfield Lane,
Midland, MI 48640 (US).(74) Agent: ZERULL, Susan, Moeller; Intellectual Property, P.O.
Box 1967, Midland, MI 48641-1967 (US).(81) Designated States: JP, KR, SG, European patent (AT, BE, CH,
CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL,
PT, SE).

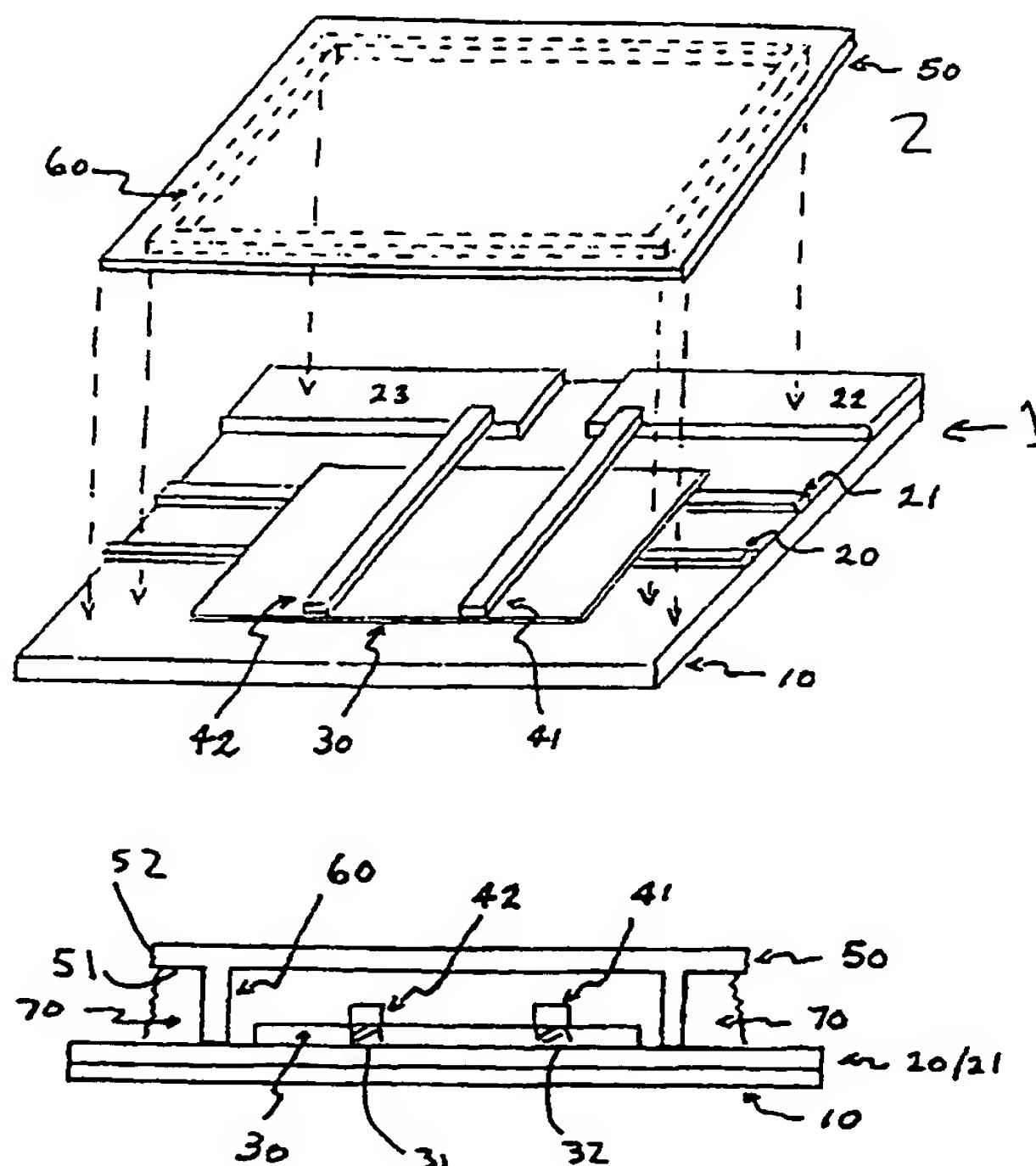
Published

*With international search report.**Before the expiration of the time limit for amending the
claims and to be republished in the event of the receipt of
amendments.*

(54) Title: AN ELECTROLUMINESCENT OR PHOTOCELL DEVICE HAVING PROTECTIVE PACKAGING

(57) Abstract

The device of this invention comprises an optoelectronic element (1), a cover (2), and an adhesive (70). The optoelectronic element comprises a substrate (10) bearing an anode (20, 21), a film comprising an optoelectronic material (30), and a cathode (41, 42). The cover comprises a lid (50) and a raised rim (60) which is recessed from the outer edge of the lid. The cover (2) contacts the element (1) so that the film comprising the optoelectronic material (30) is located between the substrate and the lid, and within the region defined by the raised rim (60). An adhesive (70), located in a channel defined by the bottom surface of the lid from the outer edge to the rim, the rim, and the top surface of the optoelectronic element outside of the region defined by the rim, serves to attach the cover to the optoelectronic element.



FOR THE PURPOSES OF INFORMATION ONLY

Codes used to identify States party to the PCT on the front pages of pamphlets publishing international applications under the PCT.

| | | | | | | | |
|----|--------------------------|----|--|----|--|----|--------------------------|
| AL | Albania | ES | Spain | LS | Lesotho | SI | Slovenia |
| AM | Armenia | FI | Finland | LT | Lithuania | SK | Slovakia |
| AT | Austria | FR | France | LU | Luxembourg | SN | Senegal |
| AU | Australia | GA | Gabon | LV | Latvia | SZ | Swaziland |
| AZ | Azerbaijan | GB | United Kingdom | MC | Monaco | TD | Chad |
| BA | Bosnia and Herzegovina | GE | Georgia | MD | Republic of Moldova | TG | Togo |
| BB | Barbados | GH | Ghana | MG | Madagascar | TJ | Tajikistan |
| BE | Belgium | GN | Guinea | MK | The former Yugoslav Republic of Macedonia | TM | Turkmenistan |
| BF | Burkina Faso | GR | Greece | ML | Mali | TR | Turkey |
| BG | Bulgaria | HU | Hungary | MN | Mongolia | TT | Trinidad and Tobago |
| BJ | Benin | IE | Ireland | MR | Mauritania | UA | Ukraine |
| BR | Brazil | IL | Israel | MW | Malawi | UG | Uganda |
| BY | Belarus | IS | Iceland | MX | Mexico | US | United States of America |
| CA | Canada | IT | Italy | NE | Niger | UZ | Uzbekistan |
| CF | Central African Republic | JP | Japan | NL | Netherlands | VN | Viet Nam |
| CG | Congo | KE | Kenya | NO | Norway | YU | Yugoslavia |
| CH | Switzerland | KG | Kyrgyzstan | NZ | New Zealand | ZW | Zimbabwe |
| CI | Côte d'Ivoire | KP | Democratic People's Republic of Korea | PL | Poland | | |
| CM | Cameroon | KR | Republic of Korea | PT | Portugal | | |
| CN | China | KZ | Kazakstan | RO | Romania | | |
| CU | Cuba | LC | Saint Lucia | RU | Russian Federation | | |
| CZ | Czech Republic | LI | Liechtenstein | SD | Sudan | | |
| DE | Germany | LK | Sri Lanka | SE | Sweden | | |
| DK | Denmark | LR | Liberia | SG | Singapore | | |
| EE | Estonia | | | | | | |

AN ELECTROLUMINESCENT OR PHOTOCELL DEVICE
HAVING PROTECTIVE PACKAGING

This application is under a Government contract with The Department of
5 Commerce Naval Air Warfare Center Program, Project Number N00421-98-3-1187.

This invention relates to devices having an anode, a cathode, and an
optoelectronic film between the anode and the cathode. The invention especially relates to
such devices where the optoelectronic film comprises an organic optoelectronic material.

Optoelectronic devices such as photocells (for example, photodetectors,
10 photodiodes, photovoltaics) and electroluminescent (EL) elements may be formed by
sandwiching films comprising optoelectronic materials between electrodes. When an EL
device is subjected to an applied voltage, holes injected from the anode and electrons
injected from the cathode will combine in the optoelectronic material to form singlet excitons,
which can undergo radiative decay, thereby liberating light. Conversely, in photocells, light
15 that is incident upon the optoelectronic material is converted into electric current.

Optoelectronic devices have been made with certain inorganic and organic
semi-conductors as the optoelectronic materials. In addition, the film comprising the
optoelectronic material may comprise a plurality of layers based on materials of the desired
properties. Constituent organic optoelectronic materials may be polymeric, as described by
20 Kraft and coworkers in Angew. Chem. Int. Ed., Vol. 37, pp. 402-428, (1998), or monomeric,
as described by Tang and VanSlyke in U.S. Patent 4,885,211 and by Tang in Information
Display, pp. 16-19, October, 1996. Other suitable materials include those disclosed in U.S.
Patents 5,708,130; and 5,728,801; PCT Applications WO 97/33193 and WO 00/06665; and
U.S. Patent Application, Serial No. 09/289,344.

25 The anode is typically a transparent or semi-transparent conducting material,
deposited on a transparent substrate, such as glass, so that light can escape from the EL
element or so that the optoelectronic film can be exposed to light. Indium-tin-oxide (ITO) is
generally the preferred anode material because of its excellent optical transparency and
electrical conductivity. Because most organic materials have low electron affinity, efficient
30 injection of electrons into them from the cathode is only possible when the cathode is a
metal of low work function, which can be deposited as pin-hole-free films by evaporation in
high vacuum or by sputtering. Preferred metals are lithium, calcium and magnesium, as well
as their alloys and blends with metals of higher work function. The use of low work function
metals in EL elements leads to higher EL efficiency but also environmental instability, as
35 these metals are known to be extremely sensitive to oxygen and moisture in ambient air.

Indeed, EL elements with calcium cathodes have been reported to lose 90 percent of their efficiency in 37 seconds in a highly humid environment according to Sheats, et al. in Science, Vol. 273, (1996), pp. 884-888. Magnesium is sometimes seen as a compromise choice, yet its stability in EL elements still leaves much to be desired, as Tang and VanSlyke (U.S. Patent 4,885,211) had shown that efficiency of these elements may drop by more than an order of magnitude in a matter of hours when exposed to an ambience, with a relative humidity of 20 percent or higher due to cathode corrosion.

In addition to the cathodes, polymer films in EL or photocell devices must also be protected from ambient oxygen and moisture as the injection of charge carriers generates highly sensitive chemical species: radical anions formed by injection of electrons and radical cations formed by injection of holes into the polymer film are readily destroyed by oxygen and water.

There is clearly a need for an effective packaging scheme to protect EL elements and photocell elements from ambient environment if they are to be used in commercial displays. This need has been recognized and several packaging approaches have been reported.

WO97/46052 teaches the use of a sheet of low melting metal alloys bonded onto the cathode of an EL element. Since the alloy layer is in direct contact with the cathode and, indeed, serves as the wiring contact, this approach is not suitable for EL elements with patterned cathodes, which is the preferred method for creating dot-matrix displays.

Another approach (see EP 777,281, and WO 97/16053) involves coating the cathode first with an organic film which is, in turn, coated with layers of metals, metal oxides, inorganic oxides, or, inorganic fluorides and the like. The problem with this approach is the application of the organic coating onto the cathode. Once an EL element is formed, no part of it may be exposed to moisture, organic solvent, oxygen, and elevated temperatures without causing damage. Thus, the application of an organic coating to a formed EL element, possible in principle, would be extremely difficult to accomplish without damaging the EL element in some way.

Yet another approach described in JP 7014675 involves co-forming films which are mixtures of inorganic fluorides and oxides and plasma-polymerized poly-*p*-xylylene. The inventor acknowledged the inferior barrier (to oxygen and moisture) properties of the polymer vs inorganic materials because of the presence of macro defects. Therefore, diluting the beneficial barrier properties of the inorganic materials with poly-*p*-xylylene can

hardly be an advantage. Furthermore, organic emitting materials are readily damaged by intense ultraviolet light inherent to the plasma generation process. Even if this packaging approach could protect the cathodes from oxygen and moisture in an ambient environment, it is likely to cause irreversible damage to the optoelectronic properties of the organic material.

A fourth approach involves sealing the flange of a metal or glass lid with a UV-curable adhesive onto the glass substrate of the EL element in vacuum or in an atmosphere of very dry nitrogen, as described by Nakada and Tohma in Display Devices, 1998, pp. 29-32. The dimensions of the lid are chosen such that there is a gap between the inner surface of the lid and the cathode. The adhesive film must provide adhesion between the cover and element and barrier to the ingress of moisture and oxygen. Since adhesion and barrier properties result from different chemical designs, it's unlikely for an adhesive to perform well in both functions. Material selection would be a compromise. It is also critical that the adhesive film be free of voids and pinholes and the adhesive be free of volatile organic compounds, dissolved gas, and moisture, which would be otherwise trapped in the sealed compartment and will eventually cause device deterioration.

It is clear that all of the known approaches have limitations. It is the object of this invention to provide a simple, yet effective, packaging scheme free of said limitations.

Figure 1A is a drawing of a representative cover with a raised rim for encapsulating optoelectronic elements; 1B is a cross-sectional view of the representative cover and raised rim.

Figure 2 shows the positioning of a representative cover relative to a representative optoelectronic element.

Figure 3 is a cross-section view of Figure 2 after the cover is attached to the optoelectronic element and sealed with an adhesive.

Figure 4 is a drawing of a glass sheet used in making a representative cover.

The device of this invention comprises a optoelectronic element, a cover, and an adhesive. The optoelectronic element comprises a substrate bearing an anode, a film comprising an optoelectronic material, and a cathode. The cover comprises a lid and a raised rim, which is recessed from the outer edge of the lid. The cover contacts the element so that the film comprising the optoelectronic material is located between the substrate and the lid, and within the region defined by the raised rim. An adhesive, located in a channel defined by the bottom surface of the lid from the outer edge to the rim, the rim, and the top

surface of the optoelectronic element outside of the region defined by the rim, serves to attach the cover to the optoelectronic element.

"Optoelectronic material" as used herein means a material, which is capable of converting electrical charge to light and vice versa, and, optionally, whose conductivity is enhanced by exposure to light.

"Optoelectronic element" as used herein means an electroluminescent device, a photocell, or similar devices.

The invention is further described with reference to the figures. Drawings are not scaled to true dimensions, some of which are exaggerated for purpose of clarity.

Figure 1A shows a representative cover 2 having a lid 50 and a raised rim 60 extending from the bottom surface 51 of the lid 50. The rim 60 is recessed from the outer edge 52 of the lid 50.

The optoelectronic element 1 shown in Figures 2 and 3 is a 4-pixel electroluminescent element. The element 1 comprises a substrate 10, two strips of anode 20 and 21 on the substrate, optoelectronic material 30, which is electroluminescent and is coated over the anode 20, 21, and the substrate 10, two strips of cathode 41 and 42 over the optoelectronic material 30, the cathode strips are in contact with conducting pads 22 and 23. Alternative means of contacting the anode and cathode to the optoelectronic material may be used. For example, a continuous layer of anode material could be covered by an image-wise distribution of an insulating material, such as a photoresist. The optoelectronic material would then be applied over the anode and the imaged insulating layer. Such a system would provide a luminescent image negative to the image of the insulating material. In addition, other supplementary layers, which are known in the art, such as barrier or protective layers, may also be used.

In an electroluminescent device, the conducting pads 22, 23 and the anodes 20, 21 are connected to a voltage source in such a way that the anode is positive relative to the conducting pads. The element then becomes electroluminescent in the area of the optoelectronic material defined by the intersections 31 and 32 of the anodes 20 and 21 with the cathodes 41 and 42. In a photodiode or photodetector, the conducting pads 22, 23 and the anodes 20, 21 are connected to a current collector, a current detector or another device run by the generated electricity.

The substrate 10 for the optoelectronic element 1 is a rigid, and, preferably, transparent material, such as glass or quartz. At least one of the substrate 10 or the lid 50

should be transparent so that light can enter or exit the device. The anode 20, 21 is preferably a transparent or semi-transparent material as is known in the art, such as indium tin oxide (ITO). The thickness of the anode is preferably less than about 1 micron, more preferably less than 0.5 micron, and most preferably less than 0.25 micron. The conducting
5 pads may comprise any suitable conductive materials, such as an inert metal (for example, gold) or the material used in the anode (for example, ITO). The conductive pads preferably have a thickness less than about 1 micron, more preferably less than 0.5 micron and most preferably less than 0.25 micron.

The cathode 41, 42 is typically a metal or metal alloy having a low work
10 function. Preferred materials include lithium, calcium, magnesium, alloys and blends of such metals with metals of higher work function. Preferably, prior to attachment of the cover, a thin, electrically insulating inorganic film is applied over the cathodes by either thermal evaporation or sputtering. Materials for this insulating film may be selected from among oxides of Ca, Mg, Si, Ge, and Mo, fluorides of Li, Ca or Mg, and nitrides of Si, and Ge.
15 Preferably film thickness is no greater than 0.05 mm (millimeter) and no less than 0.001 mm with the provision that there is maintained a space between the inner surface of the lid and the surface of this film.

The optoelectronic material is preferably an organic charge carrier
transporting material. For electroluminescent devices these materials must emit light and for
20 photodiodes these materials must be capable of generating or carrying current when exposed to light. These materials are typically highly conjugated materials and may be monomeric or polymeric. Suitable monomeric materials include, for example, tertiary aromatic amines, metal complexes of 8-hydroxyquinoline, diarylbutadienes, stilbenes, as disclosed in U.S. Patent 4,769,292 (Tang, et al.) and Tang, Information Display, October
25 (1996), pp. 16-19. Examples of suitable polymeric materials include polyarylene vinylenes and polyfluorenes. See, for example, Kraft, et al., Angew. Chem. Int. Ed. Vol. 37, pp. 402-428 (1998); U.S. Patents 5,708,130; 4,885,211 and 5,728,801; PCT Applications WO 97/33193 and WO 00/06665; and U.S. Patent Application, Serial No. 09/289,344 (Attorney Docket No. 44478A). The film comprising the optoelectronic material may also comprise
30 other materials blended with the optoelectronic material as may be known in the art, such as stabilizers, adhesion promoters, fillers, and matrix materials. Alternatively, the film may comprise more than one layer of various materials, which may be other optoelectronic materials or non-optoelectronic materials, such as those which provide barrier or protective

properties. Other materials or layers added to the film should be chosen so as not to unduly inhibit the light emission or current generating properties of the film.

In the preferred embodiment, the rigid transparent substrate 10 bearing at least one transparent anode 20 is coated with the optoelectronic material or its precursor.

5 After forming the layer of the optoelectronic material, the cathode is deposited as a pin-hole-free film by evaporation in high vacuum or by sputtering.

The cover 2 is placed on the optoelectronic element 1 so that the rim 60 contacts the top surface(s) of the element 1. Referring to Figures 3 and 1B, the height, b, of the rim 60 is preferably such that there is no contact between the top surface of the
10 optoelectronic element 1 and the lid 50. Such a gap is desirable to protect the surface of the element from damage. The gap preferably has a thickness of at least 1 micron, more preferably at least 2 microns, and most preferably at least 5 microns. The cathodes 41 and 42, which are typically located at the top of the element, are particularly fragile. The height, b, of the rim 60 is preferably no greater than 3 mm and no less than 0.05 mm for most
15 optoelectronic elements. The width, a, of the rim 60 is preferably no greater than 5 mm and no less than 0.1 mm. The rim 60 is preferably recessed from the outer edge of the lid by a distance, c, no greater than 5 mm and no less than 0.5 mm.

The lid should preferably be fabricated from a rigid material with high barrier properties to oxygen and moisture. Examples of suitable materials include, for example,
20 glass, quartz, ceramic, aluminum, and stainless steel. Commercially available plastics may also be selected if the thus fabricated lid is given a barrier coating prior to use. Barrier coating materials include oxides of aluminum and silicon, and nitrides of silicon and germanium. The lid need not be electrically insulating. However, the rim, or portions of the rim which contact the optoelectronic element, should be electrically insulating. The rim may
25 be of the same or different material from the lid. Again, high barrier properties to oxygen and moisture are desired. These barrier properties provide one of the benefits of this invention, which is improved oxygen and moisture barrier, compared with a lid with no rim, which would simply be attached with an adhesive having relatively poor barrier properties. The rim also prevents the adhesive from seeping into the internal portions of the device, which could
30 seriously damage the device. For example, silicon nitride, a high barrier electrically insulating material, may be deposited onto a sheet of the lid material by sputtering through a mask to form the rim. Alternatively, the rim may be formed by physical or chemical etching of the lid material, such as glass, or the rim may be formed by stamping or machining from a metal sheet, followed by covering the surface of the rim with a layer of electrically insulating

film, such as aluminum oxide, silicon dioxide, silicon nitride, and the like. The thickness of the lid may vary with material choice. However, the thickness should be such to provide resistance to flexing during handling.

The cover is positioned in a manner to cover the optoelectronic material, while leaving portions of at least some of the conductive materials exposed for connections to a power source (for an electroluminescent device) or a current detector or collector (for photodetectors and photodiodes). Preferably, the cover also completely covers the relatively fragile cathodes. It may be noted from Figures 2 and 3 that there is a very small gap between the rim 60 and the substrate 10 corresponding to the thickness of the bonding pads 22, 23 and/or the anode 20, 21. This gap, however, is small enough that there is negligible effect on the barrier properties of the packaging of the device as a whole. Moreover, the adhesive, while not having excellent oxygen and moisture barrier properties, does provide some additional protection.

The adhesive is advantageously free or substantially free of volatile organic components and, preferably, cures at or near room temperatures. UV-curable adhesives and two-component epoxy adhesives having these characteristics would be suitable. The adhesive may be applied by a syringe manually or by an automated dispenser equipped with a fine nozzle, as in many of the commercially available adhesive dispensers, after the cover is put in place.

In one preferred embodiment, the inner surface of the lid is coated with a thin film of reactive metal which serves as a sacrificial "getter" of traces of moisture, oxygen, and other potential harmful contaminants trapped inside the sealed cavity. The getter film is preferably fabricated by thermal evaporation or sputtering, preferably of calcium, barium, magnesium, and the like. Since the amount of trapped contaminants should be very low if the sealing is conducted in a dry, inert atmosphere, film thickness need not exceed 0.5 mm with the provision that there is maintained a space between the cathodes and the getter film.

Example

This example illustrates the packaging of an EL element whose active area dimensions, defined as the area of the cathode, are approximately 58 mm by 40 mm constructed on a piece of ITO-glass of the dimension 75 mm by 50 mm. The ITO-glass was coated with a photoresist material, which then image-wise was exposed to light and developed to provide an image of an insulating material over the ITO. A layer of organic, polymeric optoelectronic material was then applied over the imaged photoresist and ITO. A

35 nm (nanometer) calcium cathode over-coated with 270 nm of aluminum was then applied by vacuum evaporation.

The lid was fabricated in the following manner. A rectangular gasket (see Figure 4) made from an elastic film with outside dimensions of 70 mm by 46 mm and an uniform width of about 1.5 mm was applied onto a piece of glass 73 mm by 50 mm, such that the outer edges of the gasket were uniformly recessed from the perimeter of the glass sheet, as shown in Figure 4.

The side of the glass sheet with the gasket was subjected to sand-blasting until the thickness was reduced to about 1.4 mm from the original 1.8 mm. The area covered by the elastic film gasket was not etched by the sandblasting and effectively became the raised rim. The gasket was peeled off and the now completed lid was cleaned and dried.

A 100 nm film of barium was vacuum deposited onto the inside cavity formed by the raised rim. This serves as the "getter." In an inert atmosphere, the EL element and the lid were then positioned together as shown in Figures 2 and 3. While clamped firmly to maintain the alignment of the lid and the EL element, an UV adhesive (Nordland Optical Adhesive 88 from Nordland Corp., New Brunswick, N.J.) was applied by a syringe in the manner already described. The adhesive was cured by UV light for 3 seconds from a light source Dymax Light Welder PC3, 2.5 watt/cm², 320-390 nm from Dymax Corp., Torrington, CT. The packaged device can be operated and/or stored in ambient air for long periods of time (at least several weeks) without discernable degradation of luminance, as determined by visual inspection. The device was still functioning at the time of filing of this application.

CLAIMS

1. A device comprising:

(a) an optoelectronic element comprising (i) a substrate, (ii) a film comprising an optoelectronic material on a side of the substrate, and (iii) an anode and a cathode, each of which are in contact with the film, comprising the optoelectronic material and are separated from each other, wherein the side of the substrate bearing the film comprising the optoelectronic material, the film comprising optoelectronic material, the anode and the cathode define a top surface of the optoelectronic element,

(b) a cover comprising (i) a lid having a bottom surface, and an outer edge, and (ii) a rim extending from the bottom surface of the lid, recessed from the outer edge of the lid, and defining a region circumscribed by the rim, wherein the rim contacts the top surface of the optoelectronic element so that the optoelectronic material is within the region defined by the rim, and

(c) an adhesive located in a channel defined by (i) the bottom surface of the lid between the outer edge and the rim, (ii) the rim, and (iii) the top surface of the optoelectronic element not within the region circumscribed by the rim.

2. The device of Claim 1 wherein the optoelectronic material is a luminescent organic compound.

3. The device of Claim 2 wherein the luminescent organic compound is a polymer.

4. The device of any one of Claims 1-3 wherein the optoelectronic material conducts current when exposed to light.

5. The device of any one of Claims 1-3 wherein the optoelectronic material is sandwiched between the anode and the cathode.

6. The device of any one of Claims 1-3 wherein the cathode comprises a low work function metal.

7. The device of any one of Claims 1-3 wherein there is a thin layer of a getter material on the bottom surface of the lid.

8. The device of any one of Claims 1-3 wherein there is a thin film of an inorganic, insulating material on the cathode.

9. The device of any one of Claims 1-3 wherein the lid comprises a material selected from glass, quartz, ceramic, rigid polymers having a coating of a barrier material, aluminum, and stainless steel.

5 10. The device of any one of Claims 1-3 wherein the rim comprises a material selected from glass, quartz, ceramic, or rigid polymers having a coating of a barrier material, aluminum, and stainless steel, with the proviso that if the material is electrically conducting, the portion of the rim that contacts the element is coated with an electrically insulating material.

10 11. The device of any one of Claims 1-3 wherein the adhesive is selected from UV-curable adhesive and two-component epoxy adhesives.

1/3

Figure 1A

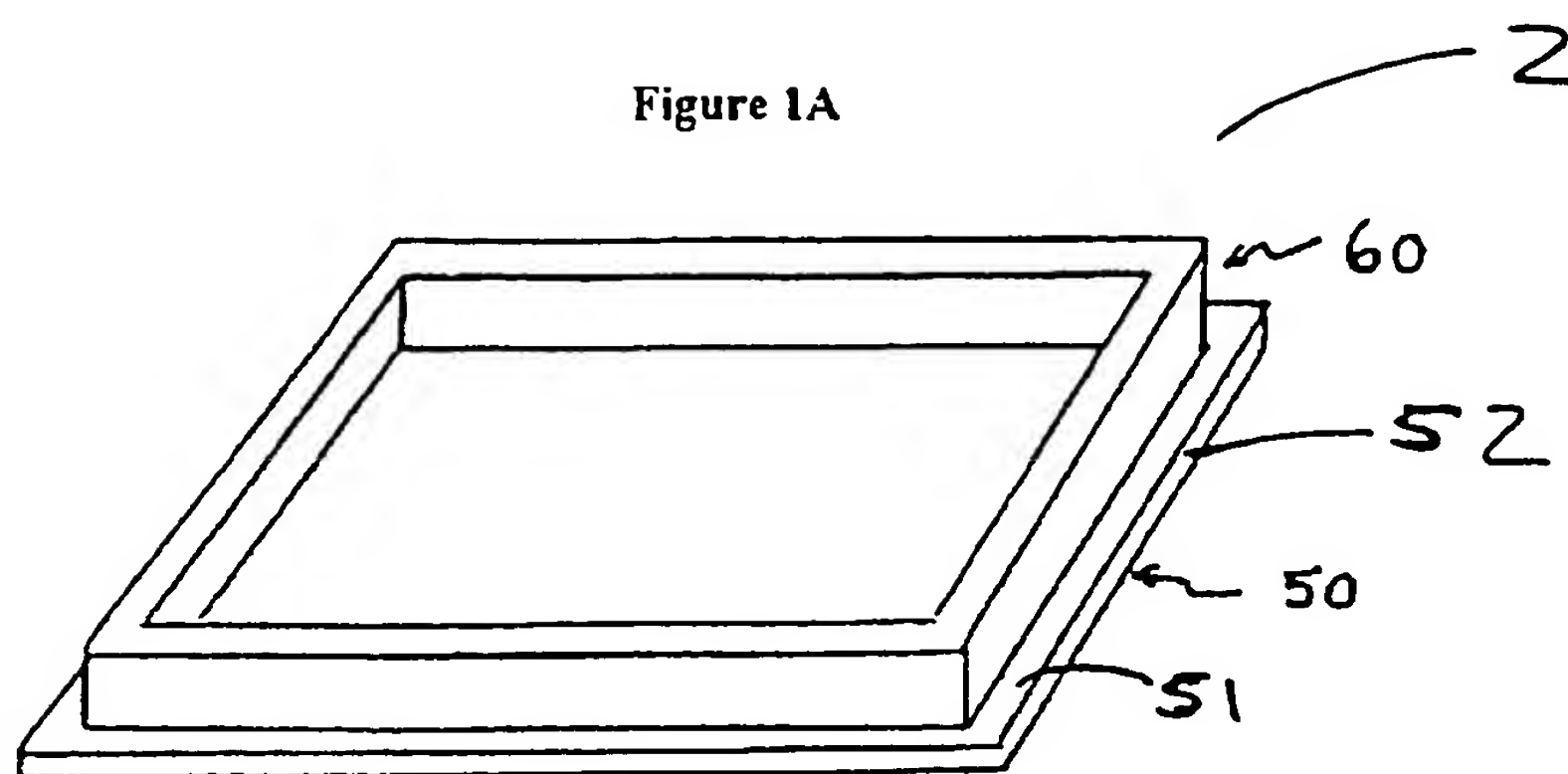


Figure 1B

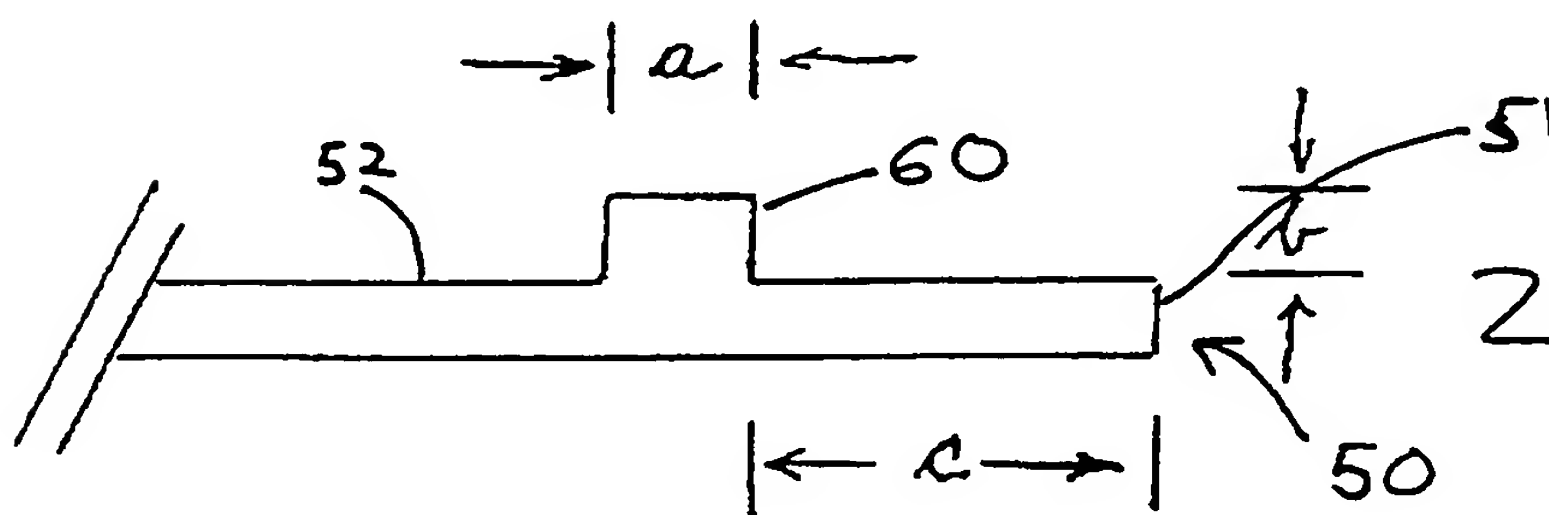


Figure 2

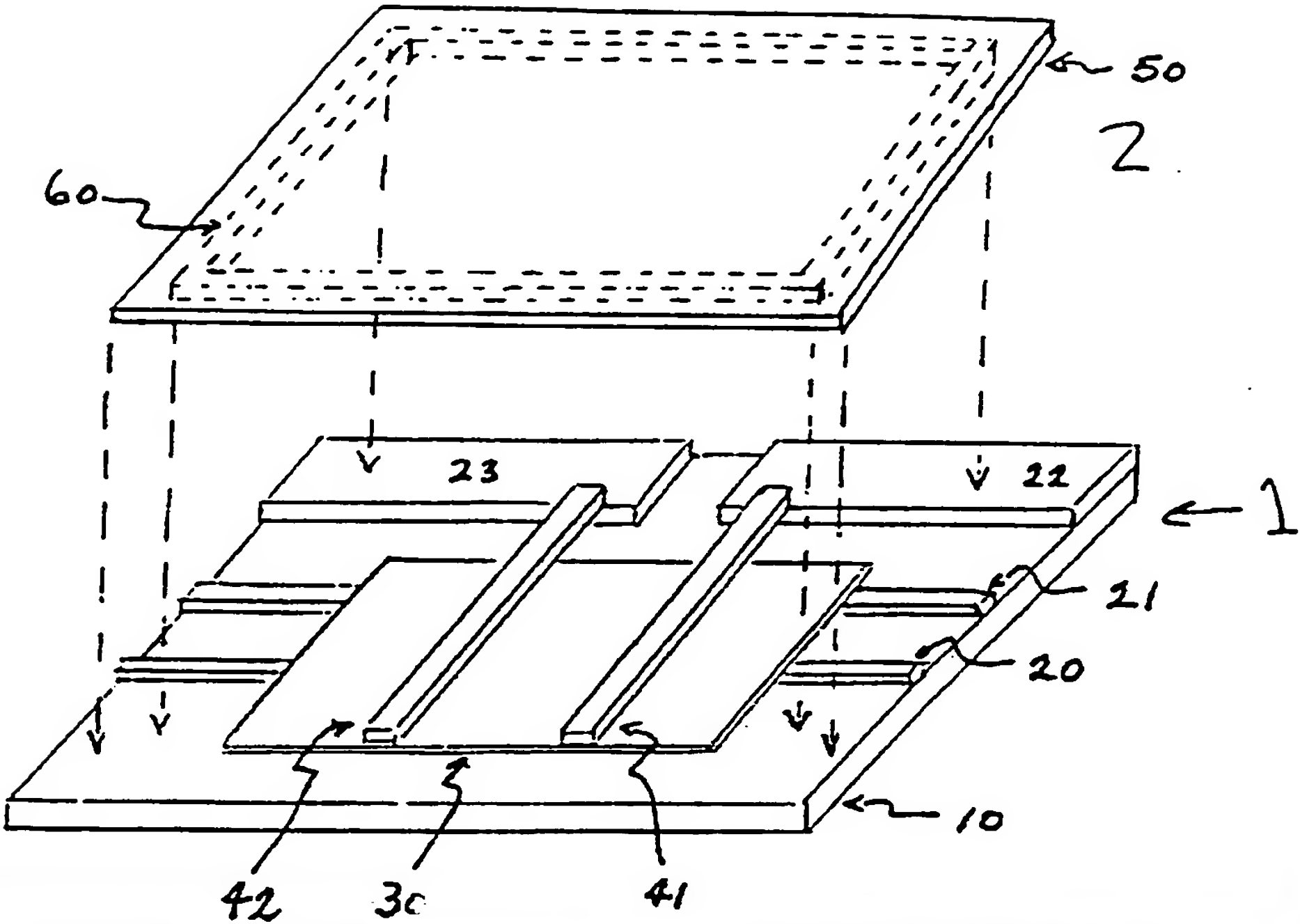
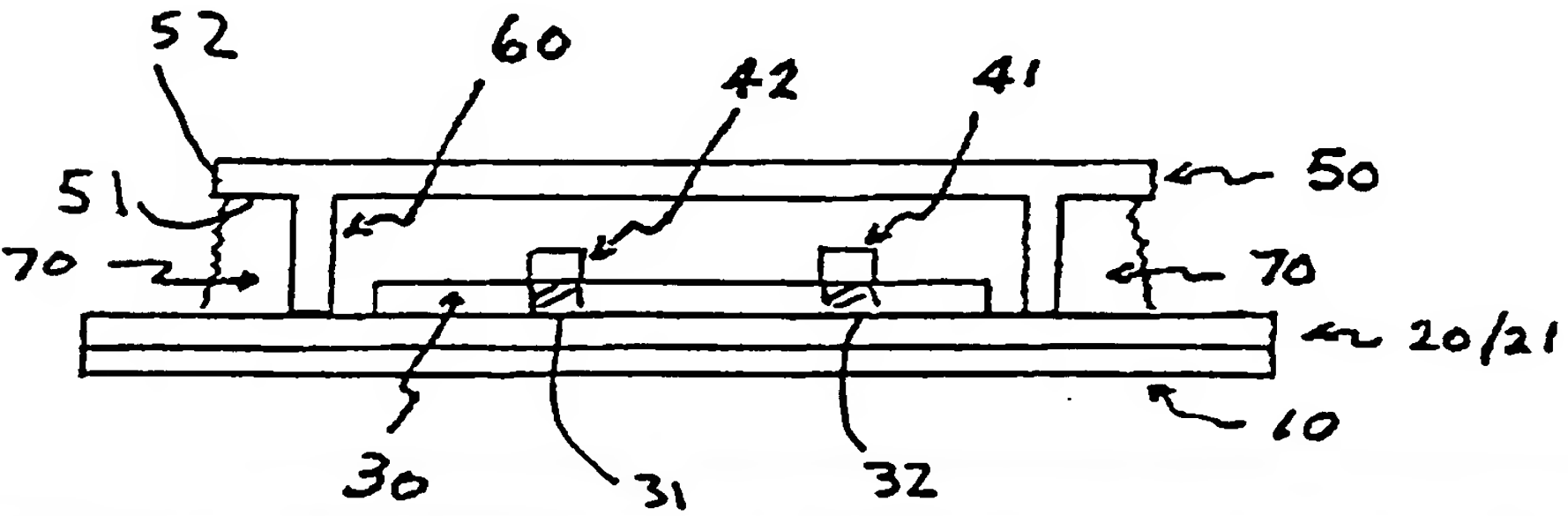
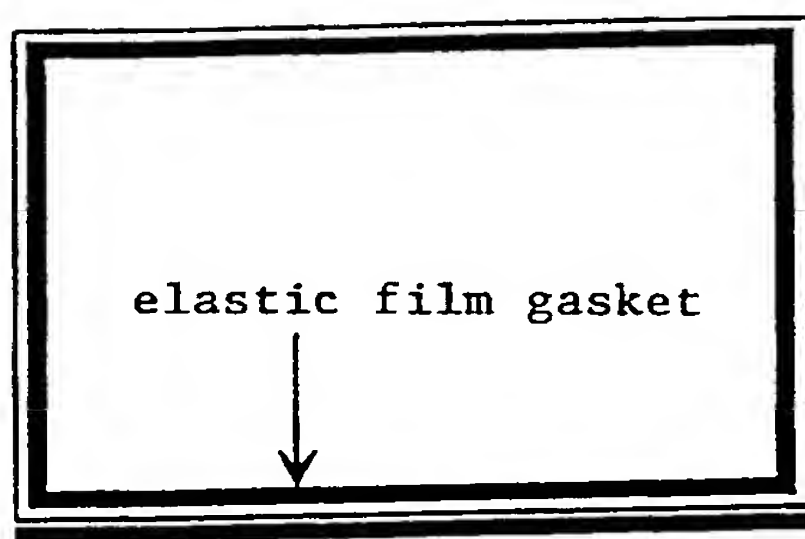


Figure 3



3/3

Figure 4



Glass sheet

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/US 00/10392

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 H01L51/20

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01L H05B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, PAJ, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| E | EP 1 021 070 A (TDK CORP) 19 July 2000 (2000-07-19) the whole document | 1,2,5,6, 8,9,11 |
| A | --- PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 017, no. 424 (E-1410), 6 August 1993 (1993-08-06) -& JP 05 089958 A (KOMATSU LTD), 9 April 1993 (1993-04-09) abstract; figures | 1,5,7 |
| A | --- EP 0 884 930 A (IDEMITSU KOSAN CO) 16 December 1998 (1998-12-15) abstract | 1,2,5-7, 9,11 |
| | --- -/-- | |

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

21 September 2000

Date of mailing of the international search report

28/09/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

De Laere, A

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/US 00/10392

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|----------|---|-----------------------|
| A | EP 0 776 147 A (PIONEER ELECTRONIC CORP ;PIONEER ELECTRONIC TOHOKU (JP)) 28 May 1997 (1997-05-28) figures --- | 1,2,5,7 |
| A | EP 0 859 539 A (TDK CORP) 19 August 1998 (1998-08-19) abstract page 7, line 13,14 ----- | 1,2,5,6, 8,9,11 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/US 00/10392

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---------------------|----------------------------|---------------------|
| EP 1021070 A | 19-07-2000 | JP 2000208252 A | 28-07-2000 |
| JP 05089958 A | 09-04-1993 | NONE | |
| EP 0884930 A | 16-12-1998 | WO 9731508 A | 28-08-1997 |
| EP 0776147 A | 28-05-1997 | JP 9148066 A | 06-06-1997 |
| | | US 5882761 A | 16-03-1999 |
| EP 0859539 A | 19-08-1998 | JP 10233283 A | 02-09-1998 |
| | | JP 10241858 A | 11-09-1998 |
| | | US 6049167 A | 11-04-2000 |

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
15. März 2001 (15.03.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/18886 A2

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: **H01L 51/00**

44, 91096 Möhrendorf (DE). ROTH, Wolfgang [DE/DE];
Holunderweg 12, 91080 Uttenreuth (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: **PCT/DE00/03108**

(22) Internationales Anmeldedatum:
7. September 2000 (07.09.2000)

(74) Gemeinsamer Vertreter: **SIEMENS AKTIENGE-
SELLSCHAFT**; Postfach 22 16 34, 80506 München
(DE).

(25) Einreichungssprache: **Deutsch**

(81) Bestimmungsstaaten (*national*): CA, CN, JP, KR, US.

(26) Veröffentlichungssprache: **Deutsch**

(30) Angaben zur Priorität:
199 43 148.5 9. September 1999 (09.09.1999) **DE**

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): europäisches Patent (AT,
BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC,
NL, PT, SE).

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von
US): **SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT** [DE/DE];
Wittelsbacherplatz 2, 80333 München (DE).

Veröffentlicht:

— Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu
veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.

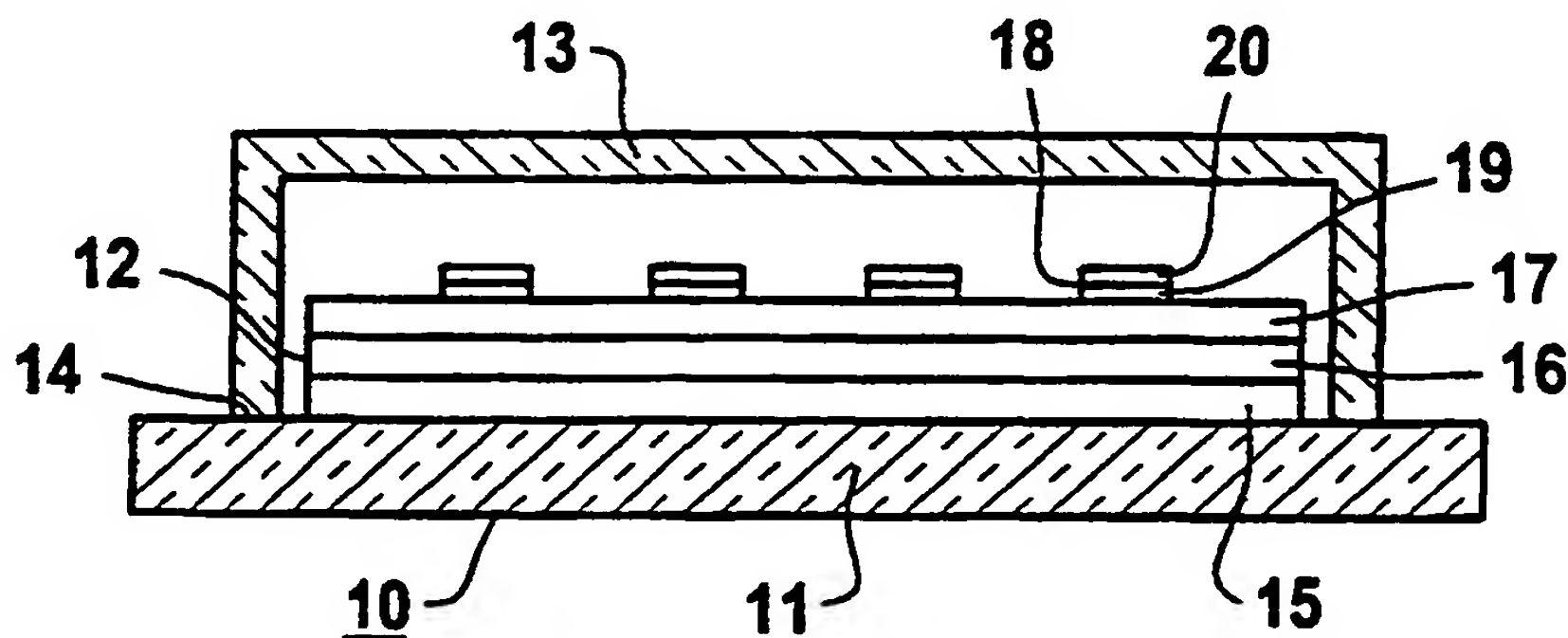
(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **HAMANN, Christoph**
[DE/DE]; Erlenweg 2, 85551 Kirchheim (DE). **AMBRUG-
GER, Alois** [DE/DE]; Benediktenwand 3/I, 82393 Iffel-
dorf (DE). **ROGLER, Wolfgang** [DE/DE]; Frankenstrasse

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe
der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: **COMPONENTS AND THE PRODUCTION THEREOF**

(54) Bezeichnung: **BAUELEMENTE UND DEREN HERSTELLUNG**



(57) Abstract: The inventive components comprise the following elements: a glass substrate (11), an organic light-emitting diode (12) arranged on said glass substrate (11), and; a glass cover (13) which is arranged over the organic light-emitting diode (12) and which is glued, on the edge (14), to the glass substrate (11). The glass cover is made from a glass plate by three-dimensionally removing material from the same using a beam method.

(57) Zusammenfassung: Die Bauelemente nach der Erfindung weisen folgende Komponenten auf: ein Glassubstrat (11), eine auf dem Glassubstrat (11) angeordnete organische lichtemittierende Diode (12) und eine über der organischen lichtemittierenden Diode (12) angeordnete Glaskappe (13), die am Rand (14) mit dem Glassubstrat (11) verklebt ist, wobei die Glaskappe aus einer Glasplatte durch dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines Strahlverfahrens hergestellt ist.

WO 01/18886 A2

Beschreibung

Bauelemente und deren Herstellung

- 5 Die Erfindung betrifft Bauelemente und ein Verfahren zur Herstellung von Bauelementen.

Bauelemente weisen ein optoelektronisches Funktionselement auf, das im allgemeinen auf einem Substrat, insbesondere
10 einem Glassubstrat, angeordnet ist. Das optoelektronische Funktionselement kann eine lichtemittierende Diode (LED) sein, beispielsweise eine organische lichtemittierende Diode (OLED).

- 15 LEDs bzw. OLEDs bestehen aus mehreren Funktionsschichten und weisen beispielsweise folgenden Aufbau auf (siehe dazu: „Philips Journal of Research“, Vol. 51 (1998), Seiten 467 bis 477): Eine dünne ITO-Schicht (ITO = Indium Tin Oxide) als transparente Elektrode, eine leitende Polymerschicht, eine
20 elektrolumineszierende Schicht, d.h. eine Schicht aus lichtemittierendem Material, insbesondere aus einem lichtemittierenden Polymer, und eine Elektrode aus einem Metall mit geringer Austrittsarbeit.

- 25 Da die zum Aufbau von LEDs bzw. OLEDs verwendeten Materialien teilweise sehr empfindlich gegenüber Wasser und Sauerstoff sind, müssen sie gegen Umwelteinflüsse abgekapselt werden, d.h. sie werden in einem Gehäuse angeordnet. Dies kann beispielsweise in der Weise geschehen, daß die auf einem Glas-
30 substrat angeordnete LED bzw. OLED mit einer Glasplatte abgedeckt wird und diese Glasplatte mit dem Glassubstrat verklebt wird (siehe dazu: „Applied Physics Letters“, Vol. 65 (1994), Seiten 2922 bis 2924). Die Verklebung erfolgt beispielsweise mit einem Epoxidharz. Hierbei ist allerdings eine
35 relativ dicke Klebefuge erforderlich, so daß über die Klebeschicht Feuchtigkeit in den Hohlraum zwischen Glassubstrat und Glasplatte eindringen kann.

Es ist auch bereits eine elektrolumineszierende Anordnung bekannt, bei der das Gehäuse, in welches das eine elektrolumineszierende organische Schicht aufweisende elektrolumineszierende Element eingeschlossen ist, eine Schicht aus einem niedrigschmelzenden Metall oder einer entsprechenden Legierung umfaßt, die mittels einer Klebeschicht an ein das elektrolumineszierende Element tragende Substrat gebunden ist (siehe: WO 97/46052). Auf diese Weise kann zwar eine hohe Dichtigkeit der elektrolumineszierenden Anordnung erreicht werden, dies ist aber mit einem großen Aufwand und hohen Kosten verbunden. Ein weiterer Nachteil besteht darin, daß durch die relativ hohen Temperaturen, die zur Verarbeitung des Metalls bzw. der Legierung aus der Schmelze erforderlich sind, das elektrolumineszierende Element geschädigt werden kann.

Dies gilt im Prinzip auch bei einem Verfahren, bei dem das organische Funktionselement, insbesondere eine OLED, unter Verwendung von Glaslot eingekapselt wird (deutsche Patentanmeldung Akt.Z. 198 45 075.3). Die für das Prozessieren heutzutage verfügbarer Glaslote notwendigen Temperaturen führen nämlich bei OLEDs zu einer Schädigung der funktionellen organischen Materialien. Außerdem ist hierbei zwischen dem Deckel des Gehäuses und dem Glassubstrat ein zusätzlicher Rahmen angeordnet, um eine mechanische Schädigung des OLED-Aufbaus zu vermeiden. Dies bedeutet aber zusätzliche Arbeitsschritte und Klebefugen, verbunden mit der Gefahr von Undichtigkeiten.

Aus der EP-OS 0 776 147 ist eine organische elektrolumineszierende Anordnung bekannt, bei der die lichtemittierende Diode in einem luftdichten Behälter angeordnet ist, um sie von der externen Atmosphäre abzuschirmen. Im Behälter ist außerdem - getrennt von der Diode - eine Substanz zur chemischen Absorption von Feuchtigkeit im Innenraum vorhanden. Der Behälter besteht aus einem Dichtungsgehäuse, einem transparenten Substrat, das dieses Gehäuse bedeckt, und einem

Dichtungsmittel, welches das Substrat an das Gehäuse bindet. Gehäuse und Substrat können aus Glas bestehen.

5 Glasgehäuse werden üblicherweise durch Gießen oder Umformen, d.h. Pressen, hergestellt. Die dabei erhaltenen Behälter sind aber wenig präzise und die Oberflächen sind glatt. Außerdem sind die Oberflächen nicht hinreichend plan. Beim Versiegeln von OLEDs müssen die Klebeflächen aber - mit einer Toleranz von wenigen Mikrometern - plan sein. Deshalb ist bei derarti-
10 gen Behältern ein aufwendiges Nachbearbeiten der Klebeflächen erforderlich.

Aufgabe der Erfindung ist es, Bauelemente, die ein optoelektronisches Funktionselement enthalten, derart auszugestalten,
15 daß einerseits das Funktionselement hermetisch gekapselt ist, d.h. durch Umwelteinflüsse, wie Wasser und Luft, nicht beeinträchtigt wird und auch nicht mechanisch beschädigt werden kann, und daß andererseits die Kapselung in relativ einfacher Weise realisiert werden kann.

20

Dies wird erfindungsgemäß durch Bauelemente erreicht, die folgende Komponenten aufweisen:

- ein Glassubstrat
- eine auf dem Glassubstrat angeordnete organische licht-
25 emittierende Diode und
- eine über der organischen lichtemittierenden Diode angeordnete und am Rand mit dem Glassubstrat verklebte Glaskappe, die aus einer Glasplatte durch dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines Strahlverfahrens hergestellt
30 ist.

Bei den Bauelementen nach der Erfindung bildet die Glaskappe zusammen mit dem Glassubstrat einen stabilen Hohlraum, in dem die OLED angeordnet ist; eine mechanische Schädigung ist so-
35 mit ausgeschlossen. Auch eine Schädigung durch Umwelteinflüsse tritt nicht auf, weil die Bauelemente hermetisch ab-

gekapselt, d.h. dicht verschlossen sind, wozu lediglich eine sehr schmale Klebefuge erforderlich ist.

Die Verwendung von Glaskappen - anstelle von Überzügen aus Metall - in Verbindung mit Glassubstraten hat den Vorteil, daß Gläser mit angepaßtem thermischen Ausdehnungskoeffizient verwendet werden können. Dadurch läßt sich der mechanische Streß auf die Klebefuge, wie er beispielsweise infolge einer thermischen Belastung des Bauelements durch Temperaturzyklen entsteht, minimieren.

Die Glaskappe, die zugleich Abdeckung und Rahmen ist, wird aus einer Glasplatte hergestellt, und zwar durch einen dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines Strahlverfahrens. Hierbei wird - mit hoher Präzision - eine Aussparung mit definierter Geometrie und Tiefe gebildet. Eine derartige Vorgehensweise ist im Prinzip bekannt, und zwar zum Einbringen von Tintenwannen und Durchbrüchen in die Deckgläser von Tintendruckköpfen (siehe dazu: DE-PS 40 18 132).

Die Glaskappen können durch Sandstrahlen hergestellt werden, d.h. mittels Quarzsand. Als Strahlmittel kann beispielsweise aber auch Aluminiumoxid, Siliciumoxid, Siliciumcarbid oder Borcarbid verwendet werden.

Vorzugsweise erfolgt der Materialabtrag von der Glasplatte durch Strahlspanen. Dieses Fertigungsverfahren sowie die dabei verwendeten Strahlmittel sind DIN 8200 zu entnehmen. Die Abtragsrate bzw. die erzielbare Tiefe der Aussparung ist abhängig von der Relativbewegung zwischen Werkstück und Strahldüse, von der Art des Strahlmittels, von dessen mittlerem Durchmesser, vom Strahldruck und vom Abstand der Düse zum Substrat.

Die Glaskappen nach der Erfindung können somit in einfacher Weise hergestellt werden und es ist auch keine aufwendige Nachbearbeitung erforderlich, wie es bei in üblicher Weise

hergestellten Glasgehäusen der Fall ist. Diese Glasgehäuse fallen außerdem einzeln an, und sie müssen daher beim Verkleben einzeln positioniert und prozessiert werden. Eine Einzelprozessierung ist aber teuer und für eine Massenfertigung, wie sie in der Displaytechnik üblich ist, nicht geeignet.

Im Gegensatz dazu können die Glaskappen nach der Erfindung sehr einfach auch in großen Nutzen hergestellt werden. In der Displaytechnik sind heutzutage Nutzengrößen von 16 inch x 16 inch und größer üblich. Die dafür notwendigen Glaskappen müssen für eine Massenfertigung in der gleichen Nutzengröße herstellbar sein. Dies läßt sich sehr einfach in der Weise realisieren, daß entsprechende Glasplatten über photolithographische Prozesse strukturiert werden und durch ein Strahlverfahren beispielsweise bis zu 150 Aussparungen - mit der gewünschten Form und Tiefe - in der Glasplatte erzeugt werden. Die Vereinzelung kann dann nach bekannten Verfahren erfolgen und findet in der Regel erst nach dem Fügeprozeß statt. Eine besonders bevorzugte Variante der Erfindung besteht somit darin, entsprechend einem durch ein zu verkapselndes Display vorgegebenen Layout eine Vielzahl von Aussparungen in einem Glasnutzen in einem einzigen Arbeitsgang herzustellen und die Vereinzelung erst nach dem Verkapseln durchzuführen. Ein zusätzlicher Vorteil besteht darin, daß sich nahezu jede gewünschte Form durch einfaches photolithographisches Strukturieren herstellen läßt.

Von Vorteil ist weiterhin, daß bei den durch ein Strahlverfahren hergestellten Glaskappen die innere Oberfläche, d.h. die Kappeninnenseite, aufgeraut ist. Werden nämlich zusätzlich Gettermaterialien eingesetzt, um Feuchtigkeit oder Sauerstoff zu binden, so lassen sich auf der rauhen Oberfläche anorganische Materialien durch Verdampfen langfristig stabil abscheiden. Auch können Gettersubstanzen, dispergiert in einem organischen Klebstoff, langfristig stabil mit der rauhen Kappeninnenseite verklebt werden.

Die aneinanderzufügenden Glasteile, d.h. Glaskappe und Glas-
substrat, weisen an den gemeinsamen Stellen normalerweise
eine relativ glatte Oberfläche auf. Dies kann bei der Ver-
klebung unter Umständen zu Benetzungs- und damit Haftungs-
5 problemen führen, woraus eine Klebefuge mit verringerter
Dichtigkeit resultieren könnte.

Die Erfindung sieht daher vorzugsweise vor, daß die Glaskappe
am Rand, d.h. an den Stellen, die mit dem Glassubstrat ver-
10 klebt werden, eine gewisse Rauhigkeit aufweist. Dies wird
dadurch erreicht, daß diese Stellen oberflächlich aufgerauht
sind. Die Aufrauhung, d.h. die Oberflächenbehandlung bzw.
-modifizierung des Randes der Glaskappe erfolgt dabei vor-
teilhaft in entsprechender Weise wie die Herstellung der
15 Glaskappe selbst, d.h. durch einen Materialabtrag mittels
eines Strahlverfahrens. Durch Einhalten bestimmter Verfah-
rensparameter (Strahlmittel, Strahldruck, Strahlabstand und
Strahlzeit) ist es dabei möglich, daß nur ein sehr geringer
Materialabtrag erfolgt.

20 Durch die Oberflächenbehandlung wird eine Rauhigkeit des
Glases erreicht, die zu einer Vergrößerung der Oberfläche und
damit zu einer verbesserten Benetzung und Haftung des Kleb-
stoffes beim Fügeprozeß führt; die Rauhigkeit der Glasober-
25 fläche ist dabei in einem weiten Bereich einstellbar. Durch
die Oberflächenbehandlung werden außerdem alle am Glas adsor-
bierten Verunreinigungen, die beispielsweise von der Glasher-
stellung herrühren und die Dichtigkeit der Klebefuge beein-
trächtigen könnten, von der Glasoberfläche entfernt. Damit
30 entfallen aufwendige Reinigungsschritte vor dem Fügen der
Glasteile. Wegen des verbesserten Benetzungsverhaltens ergibt
sich darüber hinaus keine Begrenzung bei der Wahl des Kleb-
stoffes.

35 Vorteilhaft ist die Glaskappe mittels eines organischen Kleb-
stoffes mit dem Glassubstrat verklebt. Dazu dient vorzugs-
weise ein Epoxidharz.

Besonders vorteilhaft dient als Klebstoff ein UV-härtbarer Klebstoff. Die Verwendung eines derartigen Klebstoffes ist für die Verkapselung von OLEDs von Vorteil, weil die Härtung des Klebstoffes einerseits ökonomisch schnell und andererseits materialschonend bei niedrigen Temperaturen erfolgt.

Ein besonderer Vorteil von Glaskappen, die mittels eines Strahlverfahrens hergestellt wurden, ergibt sich bei der Verwendung eines UV-härtbaren Klebstoffes. Beim Strahlverfahren kann nämlich - durch die Wahl der Strahlbedingungen - die Rauigkeit der Kappeninnenseite so gestaltet werden, daß einfallende Lichtstrahlen weitestgehend diffus reflektiert werden. Dadurch wird die Energie der Lichtstrahlen soweit vermindert, daß eine Strahlenschädigung der lichtemittierenden Diode, d.h. der auf dem Glassubstrat befindlichen Materialien, vollständig vermieden werden kann. Dies ist insbesondere dann von Vorteil, wenn die Glaskappe mittels eines UV-härtbaren Klebstoffes verklebt wird, weil dabei eine Abschattung strahlungsempfindlicher Bereiche nicht erforderlich ist.

Bei den Bauelementen nach der Erfindung erfolgt die Herstellung der organischen lichtemittierenden Dioden, die durch eine Glaskappe verkapselt werden sollen, nach bekannten Verfahren. Dies sind beispielsweise Spin-coating, wenn Polymerlösungen verarbeitet werden, oder Aufdampfen, wenn Monomere verarbeitet werden. Als Substrate werden ITO-beschichtete Gläser (ITO = Indium Tin Oxide) verwendet, wobei das ITO auch strukturiert sein kann. ITO ist transparent und wird wegen seiner elektrischen Eigenschaften als Anode verwendet. Falls erforderlich, werden Hilfsschichten, wie Loch- und elektronenleitende Schichten, verwendet. Als Kathode werden Metalle, wie Calcium, aufgedampft. Die zu verbindenden Teile bestehen aus einem Glassubstrat, auf dem sich die organische lichtemittierende Diode befindet, und einer Glaskappe. Die zu fügenden Teile werden in einer inerten, d.h. insbesondere sauerstoff- und wasserfreien Atmosphäre zueinander positio-

niert und miteinander verklebt, beispielsweise mit einem organischen Kleber.

5 Anhand von Ausführungsbeispielen und einer Figur soll die Erfindung noch näher erläutert werden.

Die Figur zeigt - nicht maßstäblich - einen schematischen Querschnitt durch ein Bauelement 10 nach der Erfindung. Dabei ist auf einem Glassubstrat 11 eine organische lichtemittierende Diode (OLED) 12 angeordnet. Die OLED 12 ist durch eine Glaskappe 13 abgedeckt, welche am Rand 14 mit dem Glassubstrat 11 verklebt ist. Die OLED 12 weist folgende Bestandteile auf: eine transparente Elektrode 15, beispielsweise aus ITO, ein organisches Lochtransportmaterial 16, beispielsweise aus einem leitenden Polymer, ein organisches elektrolumineszierendes Material 17, beispielsweise ein lichtemittierendes Polymer, und eine Metallelektrode 18, die beispielsweise aus Calcium 19 und Silber 20 zusammengesetzt ist. Das organische elektrolumineszierende Material 17, d.h. der Emitter (Chromophor), dient dabei gleichzeitig als Elektronentransportmaterial. Die beiden Funktionen können aber auch getrennt sein, wobei dann das Elektronentransportmaterial zwischen Metallelektrode und Emitter angeordnet ist.

25 Beispiel 1

Herstellung von organischen lichtemittierenden Dioden

Zur Herstellung von lichtemittierenden Dioden auf Basis von Polymeren werden auf einem ITO-beschichteten Glassubstrat 30 (Kantenlänge: 4 cm x 4 cm, Dicke: 1,1 mm) mittels Photolithographie zwei zueinander parallele, 2 mm breite ITO-Streifen im Abstand von 1 cm erzeugt. Belichtete Stellen werden in einem alkalischen Medium nicht abgelöst; dadurch 35 wird das ITO geschützt. Freiliegendes ITO wird mit konz. HBr abgelöst. Auf das ITO-strukturierte Glassubstrat wird mittels Spin-coating aus wäßriger Lösung eine 70 nm dicke Schicht aus

handelsüblichem Polyethylendioxythiophen (PEDOT) aufgebracht. Diese Schicht wird durch einen Temperprozeß getrocknet. Anschließend wird darauf - ebenfalls durch Spin-coating - aus Xylol eine Emitterschicht, bestehend aus einem handelsüblichen Polyfluorenderivat, mit einer Dicke von 100 nm aufgebracht. Diese Schicht wird bei einem Druck von 10^{-6} mbar getrocknet. Beim gleichen Druck werden durch eine Schattenmaske zwei je 2 mm breite Calciumstreifen im Abstand von 1 cm als Kathoden aufgedampft. Diese Metallstreifen sind rechtwinklig zu den auf dem Glassubstrat befindlichen ITO-Strukturen angeordnet. Die Flächen der sich kreuzenden Anoden- und Kathodenbahnen, zwischen denen sich die Polymeren befinden, stellen die aktive Fläche der Leuchtdiode dar. Auf die Calciumstreifen werden - ebenfalls durch eine Schattenmaske - Silberstreifen mit einer Dicke von 150 nm aufgedampft. An den zu verklebenden Stellen wird allerdings kein Metall aufgedampft, an diesen Stellen werden vielmehr die organischen Schichten manuell abgezogen.

Zu Testzwecken werden vier von auf diese Weise hergestellte Dioden mit einer Glaskappe verkapselt. Die Außenmaße der Kappe betragen 24 mm x 24 mm (Dicke: 1,1 mm), der Kleberand beträgt 1 mm und die Tiefe der Aussparung 500 µm. Die zu fügenden Teile werden in einer sauerstoff- und wasserfreien Atmosphäre zueinander positioniert und miteinander verklebt, und zwar mit einem organischen Klebstoff. Wird bei diesem Bauelement an die ITO- bzw. Ca/Ag-Ausleitungen am Rande des Glassubstrats beispielsweise eine Spannung von 5 V angelegt, so leuchtet die verkapselte Diode grün.

Beispiel 2

Herstellung von Glaskappen mit glattem Kleberand

Zur Herstellung der Glaskappen werden 1,1 mm dicke planparallele Glasplatten verwendet. Die Glasplatten werden in einem Ultraschallbad mit Aceton 10 min gereinigt und anschließend

- 5 min in einem Sauerstoffplasma. Dann erfolgt eine Photostrukturierung der Glasoberfläche. Hierzu wird eine photostrukturierbare Folie (Dicke 75 µm), beispielsweise auf Acrylharzbasis, bei 100°C unter moderatem Druck auflaminiert.
- 5 Anstelle der Folie kann alternativ aber auch ein Photolack - mittels Spin-coating oder Siebdruck - aufgebracht werden. Nachfolgend wird durch eine Cr-Belichtungsmaske mit UV-Licht belichtet. Die Belichtungszeit wird so gewählt, daß das Material noch weich bleibt. Eine vollständig ausgehärtete Folie
- 10 wäre nämlich spröde und würde beim Strahlprozeß geschädigt. Die Entwicklung erfolgt im vorliegenden Fall alkalisch, beispielsweise mit wäßriger 1 %iger Na₂CO₃-Lösung. Hierbei werden die nicht-belichteten Stellen, an denen ein Strahlspanen erfolgen soll, abgelöst. Diese Stellen entsprechen den zu
- 15 erzeugenden Aussparungen. Die Glasplatten sind nun dort, wo beim Strahlspanprozeß kein Materialabtrag stattfinden soll, d.h. an den Rändern, durch eine elastische Kunststoffmaske geschützt.
- 20 Beim Strahlspanen wird als Strahlmittel vorzugsweise ein handelsüblicher Edelkorund mit einer mittleren Korngröße von 30 µm verwendet. Bei einem Strahldruck von vorzugsweise 5 bar, einer Injektorstrahldüse (als Strahldüse), einem Abstand Düse/Werkstück von 80 mm und einer angepaßten Relativ-
- 25 bewegung zwischen Werkstück und Strahldüse können bei einer Strahlzeit vom 10 min Aussparungen mit einer Tiefe von 500 nm erhalten werden. Nach der Erzeugung der Aussparungen wird die die Kappenränder schützende Photolackfolie bzw. der Photolack entfernt. Dies geschieht mit einem alkalischen Medium, beispielsweise mit wäßriger Na₂CO₃-Lösung. Danach erfolgt, falls
- 30 erforderlich, die Vereinzelung der Glaskappen, beispielsweise durch Sägen oder Brechen.

Beispiel 3

Herstellung von Glaskappen mit rauhem Kleberand

5 Bei der Herstellung von Glaskappen mit aufgerauhtem Kleberand wird zunächst entsprechend Beispiel 2 vorgegangen. Der entscheidende Unterschied besteht darin, daß nach der Erzeugung der Aussparung die die Kappenränder schützende Lackschicht in einem alkalischen Medium abgelöst wird. Die dann freiliegen-
10 den Ränder der Kappe werden einem Strahlspanverfahren unterworfen. Dies erfolgt durch flächiges Überstrahlen mit geringem Druck, vorzugsweise 3 bar. Als Strahlmittel wird Korund mit einer mittleren Korngröße von 9 µm verwendet. Bei einer Strahlzeit von 30 s werden Glaskappenränder mit einer Rau-
15 heit der von etwa 30 rms hergestellt. Die gewünschte Rauheit kann durch die Korngröße und die Strahlzeit in weiten Grenzen eingestellt werden.

Auch hierbei erfolgt, falls erforderlich, im letzten Schritt
20 die Vereinzelung der Glaskappen nach bekannten Verfahren, wie Sägen oder Brechen.

Beispiel 4

25 Herstellung von Bauelementen

Die bei der Herstellung der Bauelemente zu fügenden Teile, d.h. das Glassubstrat mit den darauf befindlichen organischen lichtemittierenden Dioden und die Glaskappen, werden in einer
30 insbesondere sauerstoff- und wasserfreien Atmosphäre zueinander positioniert und miteinander verklebt. Die Verklebung erfolgt mit einem organischen Klebstoff, vorzugsweise mit einem UV-härtbaren Epoxidharz. Die Applikation des Klebstoffes erfolgt durch Kapillarverguß oder automatisch mittels
35 eines Dispensers, die Härtung mit UV-Licht in einem geeigneten Wellenlängenbereich. In dieser Weise kann sowohl bei

12

Glaskappen mit glattem als auch bei Glaskappen mit rauhem Kleberand vorgegangen werden.

Beispiel 5

5

Test der Bauelemente mit gekapselten organischen licht-emittierenden Dioden

10

Entsprechend Beispiel 4 hergestellte Bauelemente werden in einer Klimakammer bei einer Temperatur von 85°C und einer relativen Feuchte von 85 % gelagert. Unter entsprechenden Bedingungen werden Bauelemente gelagert, bei denen die Dioden mit einer Glaskappe gekapselt sind, die durch mechanisches Fräsen hergestellt wurde. Während bei diesen Bauelementen die Dioden bereits nach 48 h ausfielen, konnte bei den Bauelementen nach der Erfindung die Standzeit der Dioden auf über 160 h verbessert werden, und zwar sowohl bei Glaskappen mit glattem als auch mit rauhem Kleberand.

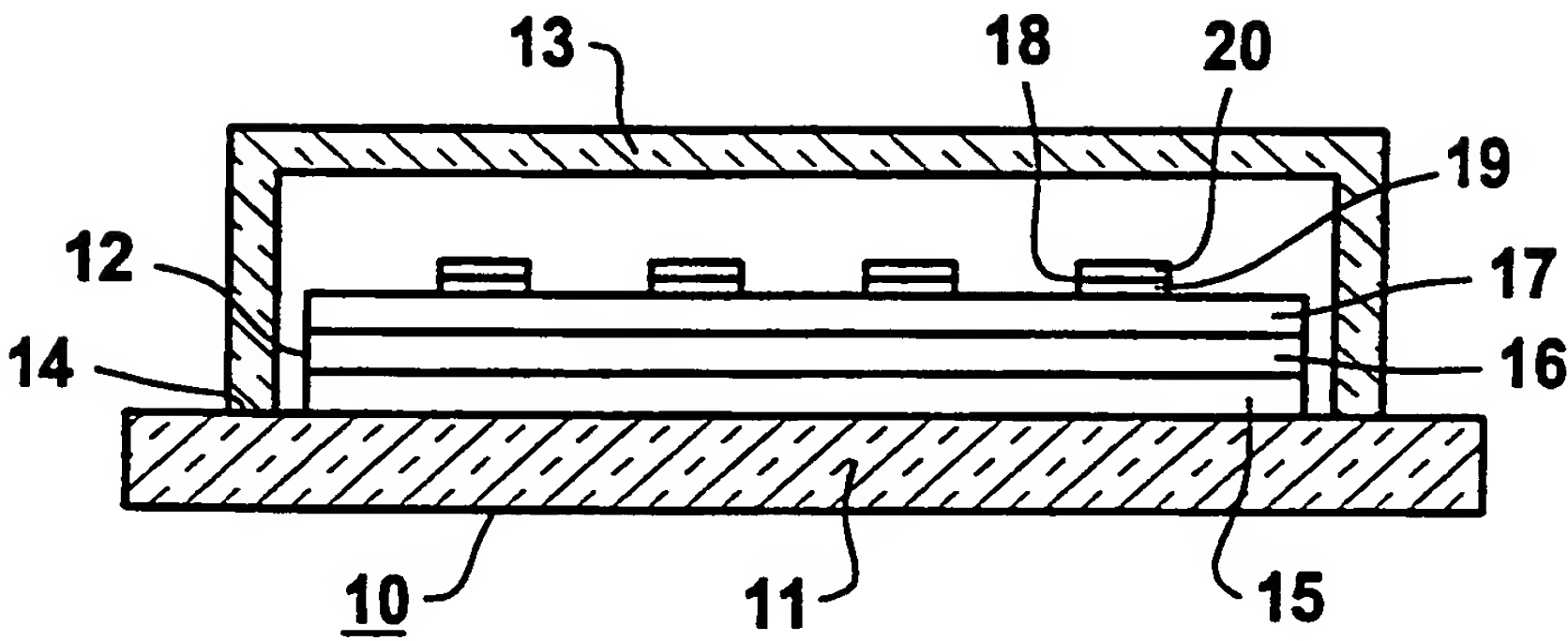
15

20

Patentansprüche

1. Bauelemente, g e k e n n z e i c h n e t durch
• ein Glassubstrat (11)
5 • eine auf dem Glassubstrat (11) angeordnete organische
lichtemittierende Diode (12) und
• eine über der organischen lichtemittierenden Diode (12)
angeordnete und am Rand (14) mit dem Glassubstrat (11)
verklebte Glaskappe (13), die aus einer Glasplatte durch
10 dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines Strahl-
verfahrens hergestellt ist.
2. Bauelemente nach Anspruch 1, d a d u r c h g e -
k e n n z e i c h n e t , daß der Rand der Glaskappe
15 oberflächlich aufgerauht ist.
3. Bauelemente nach Anspruch 1 oder 2, d a d u r c h
g e k e n n z e i c h n e t , daß die Glaskappe mittels
eines organischen Klebstoffes mit dem Glassubstrat verklebt
20 ist.
4. Bauelemente nach Anspruch 3, d a d u r c h g e -
k e n n z e i c h n e t , daß der Klebstoff UV-härtbar ist.
- 25 5. Bauelemente nach Anspruch 3 oder 4, d a d u r c h
g e k e n n z e i c h n e t , daß der Klebstoff ein Epoxid-
harz ist.
- 30 6. Verfahren zur Herstellung von Bauelementen nach einem oder
mehreren der Ansprüche 1 bis 5, d a d u r c h g e -
k e n n z e i c h n e t , daß in einer Glasplatte durch
dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines Strahlverfah-
rens eine Vielzahl von Aussparungen erzeugt wird, daß unter
Verwendung dieser Glasplatte eine entsprechende Anzahl von
35 auf einem Substrat entsprechend angeordneten organischen
lichtemittierenden Dioden verkapselt wird, und daß nachfol-

gend die dabei erhaltenen Bauelemente zumindest teilweise
vereinzelt werden.



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

REC'D 31 OCT 2001

WIPO PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

| | | |
|--|--|---|
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 1999PO3623Wo | WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416) | |
| Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/03108 | Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 07/09/2000 | Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 09/09/1999 |
| Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK H01L51/00 | | |
| Anmelder SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT et al. | | |

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.



2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☒ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

| | |
|--|---|
| Datum der Einreichung des Antrags 30/03/2001 | Datum der Fertigstellung dieses Berichts 29.10.2001 |
| Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465 | Bevollmächtigter Bediensteter Werner, A Tel. Nr. +49 89 2399 2272  |

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1-12 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

2-5 ursprüngliche Fassung

1,6-10 eingegangen am 19/09/2001 mit Schreiben vom 16/09/2001

Zeichnungen, Blätter:

1/1 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/03108

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

| | | |
|--------------------------------|-----------------|------|
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche | |
| | Nein: Ansprüche | 1-5 |
| Erfinderische Tätigkeit (ET) | Ja: Ansprüche | |
| | Nein: Ansprüche | 6-10 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (GA) | Ja: Ansprüche | 1-10 |
| | Nein: Ansprüche | |

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:
siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:
siehe Beiblatt

Zu Punkt V

**B gründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, d r
finderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und
Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: EP-A-0 910 228 (TDK CORP) 21. April 1999 (1999-04-21)

D2: EP-A-0 781 075 (IDEMITSU KOSAN CO) 25. Juni 1997 (1997-06-25)

2. Der Gegenstand der Ansprüche 1-5 ist nicht neu (Art. 33(2) PCT).

D1 (siehe Ansprüche 1,6,7, Fig. 1) alle Merkmale dieser Ansprüche. Der
Verfahrensschritt "Sandstrahlverfahren(s) unter Verwendung.." in den
Gegenstandsansprüchen wird nicht berücksichtigt, siehe Punkt VIII.

3. Der Gegenstand der Ansprüche 6-10 beruht nicht auf einer erfinderischen
Tätigkeit (Art. 33(3) PCT).

Der wesentliche Unterschied zwischen dem Verfahren nach den Ansprüchen 6-9
und dem Verfahren nach D1 besteht in der Geometrie Sandstrahlapparates und in
den spezifischen Prozessparametern des Sandstrahlverfahrens. Diese Werte sind
das Resultat von Standardversuchen. Der zusätzliche Schritt nach Anspruch 10
liegt nahe.

Zu Punkt VII

B stimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Im Widerspruch zu den Erfordernissen der Regel 5.1 a) ii) PCT werden in der
Beschreibung weder der in den Dokumenten D1 und D2 offenbarte einschlägige
Stand der Technik noch diese Dokumente angegeben.

Zu Punkt VIII

B stimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Das Bauelement nach Anspruch 1 wird durch ein Verfahren ("Materialabtrag mittels eines Strahlverfahrens unter Verwendung...") definiert, wodurch seine Kategorie unklar wird (Art. 6 PCT).

16.09.01

1

Neue Patentansprüche 1, 6 bis 10

1. Bauelemente, gekennzeichnet durch
ein Glassubstrat (1)
5 eine auf dem Glassubstrat (11) angeordnete organische
lichtemittierende Diode (12) und
eine über der organischen lichtemittierenden Diode (12)
angeordnete und am Rand (14) mit dem Glassubstrat (11)
verklebte Glaskappe (13), die aus einer Glasplatte durch
10 dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines
Sandstrahlverfahrens unter Verwendung von handelsüblichem
Edelkorund mit einer mittleren Korngröße von 30µm und
einem Strahldruck von 5 bar, hergestellt ist.
- 15 6. Verfahren zur Herstellung von Bauelementen nach einem oder
mehreren der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass
in einer Glasplatte durch dreidimensionalen Materialabtrag
mittels eines ersten Sandstrahlverfahrens unter Verwendung
von handelsüblichem Edelkorund mit einer mittleren Korngröße
20 von 30µm und einem Strahldruck von 5 bar eine Vielzahl von
Aussparungen mit durch jeweils eine Lackschicht geschützten
Kanten erzeugt wird, die Schutzschicht der Kanten dann
abgezogen wird und die freiliegenden Ränder der Aussparungen
einem weiteren Sandstrahlverfahren unterworfen werden, bei
25 dem Korund einer mittleren Korngröße von 9µm und ein
Strahldruck von nur 3 bar verwendet wird.
- 30 7. Verfahren nach Anspruch 6, bei dem im ersten
Sandstrahlverfahren als Strahldüse eine Injektorstrahldüse
verwendet wird.
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 6 oder 7, bei dem im
ersten Sandstrahlverfahren der Abstand zwischen Düse und
Werkstück 80 mm beträgt.
- 35 9. Verfahren nach einem der Ansprüche 6 bis 8, bei dem im
zweiten Sandstrahlverfahren bei einer Strahlzeit von 30s

16.09.01

2

Kanten mit einer Rauigkeit von etwa 30rms hergestellt werden.

10. Verfahren nach einem der Ansprüche 6 bis 9, bei dem nach
5 Fertigstellung der Aussparungen die Glasplatte verwendet
wird, um eine entsprechende Anzahl auf einem Substrat
entsprechend angeordneter organischer lichtemittierender
Dioden zu verkapseln und wobei auf die Verkapselung folgend
die dabei erhaltenen Bauelemente zumindest teilweise
10 vereinzelt werden.

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

| | | |
|--|---|---|
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 1999P03623Wo | WEITERES VORGEHEN | siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5 |
| Internationales Aktenzeichen PCT/DE 00/ 03108 | Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 07/09/2000 | (Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 09/09/1999 |
| Anmelder SIEMENS AG | | |

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

☐ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☒ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

ORGANISCHE LICHEMITTIERENDE DIODE UND HERSTELLUNGSVERFAHREN

5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. 1

☒ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☐ keine der Abb.



INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

T/DE 00/03108

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 H01L51/20 H05B33/04

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 H01L H05B

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

INSPEC, EPO-Internal, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|---|--------------------|
| X | EP 0 910 228 A (TDK CORP) 21. April 1999 (1999-04-21) das ganze Dokument | 1-6 |
| X | EP 0 781 075 A (IDEMITSU KOSAN CO) 25. Juni 1997 (1997-06-25) das ganze Dokument | 1,3-5 |
| A | | 6 |
| X | GB 1 366 678 A (GEN ELECTRIC CO) 11. September 1974 (1974-09-11) das ganze Dokument | 1,3,5 |
| A | | 6 |
| X | EP 0 776 147 A (PIONEER ELECTRONIC CO) 28. Mai 1997 (1997-05-28) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument | 1,3 |
| A | | 6 |
| | --- -/-- | |

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

22. Februar 2001

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

01/03/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

van der Linden, J.E.



C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie° | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|--|--------------------|
| P,X | EP 0 969 700 A (TDK CORP) 5. Januar 2000 (2000-01-05) das ganze Dokument --- | 1,3-5 |
| E | WO 00 69002 A (DOW CHEMICAL CO) 16. November 2000 (2000-11-16) das ganze Dokument ----- | 1,3-6 |



INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/03108

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument | | Datum der Veröffentlichung | Mitglied(er) der Patentfamilie | | Datum der Veröffentlichung |
|---|---|-------------------------------|-----------------------------------|--------------|-------------------------------|
| EP 0910228 | A | 21-04-1999 | JP | 11121167 A | 30-04-1999 |
| EP 0781075 | A | 25-06-1997 | JP | 8078159 A | 22-03-1996 |
| | | | JP | 9035868 A | 07-02-1997 |
| | | | US | 5962962 A | 05-10-1999 |
| | | | WO | 9608122 A | 14-03-1996 |
| GB 1366678 | A | 11-09-1974 | DE | 2254044 A | 10-05-1973 |
| EP 0776147 | A | 28-05-1997 | JP | 9148066 A | 06-06-1997 |
| | | | US | 5882761 A | 16-03-1999 |
| EP 0969700 | A | 05-01-2000 | JP | 2000003783 A | 07-01-2000 |
| WO 0069002 | A | 16-11-2000 | KEINE | | |

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
15. März 2001 (15.03.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/18886 A3

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: H01L 51/20,
H05B 33/04

44, 91096 Möhrendorf (DE). ROTH, Wolfgang [DE/DE];
Holunderweg 12, 91080 Uttenreuth (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE00/03108

(74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGE-
SELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, 80506 München
(DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:
7. September 2000 (07.09.2000)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(81) Bestimmungsstaaten (*national*): CA, CN, JP, KR, US.

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): europäisches Patent (AT,
BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC,
NL, PT, SE).

(30) Angaben zur Priorität:
199 43 148.5 9. September 1999 (09.09.1999) DE

Veröffentlicht:
— mit internationalem Recherchenbericht

(71) Anmelder (*für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von
US*): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];
Wittelsbacherplatz 2, 80333 München (DE).

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen
Recherchenberichts: 26. Juli 2001

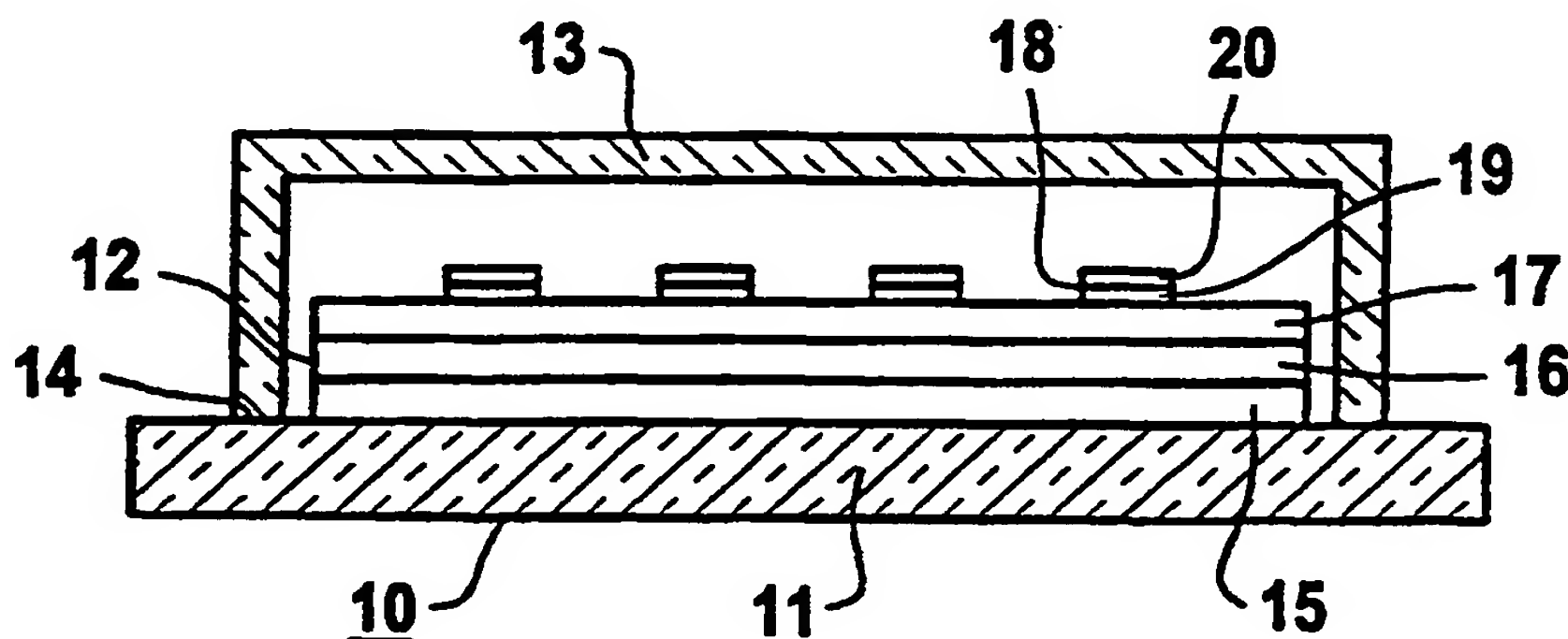
(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (*nur für US*): HAMANN, Christoph
[DE/DE]; Erlenweg 2, 85551 Kirchheim (DE). AMBRUG-
GER, Alois [DE/DE]; Benediktenwand 3/L, 82393 Iffel-
dorf (DE). ROGLER, Wolfgang [DE/DE]; Frankenstrasse

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe
der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: ORGANIC LIGHT-EMITTING DIODE AND CORRESPONDING PRODUCTION METHOD

(54) Bezeichnung: ORGANISCHE LICHEMITTIERENDE DIODE UND HERSTELLUNGSVERFAHREN



(57) Abstract: The inventive components comprise the following elements: a glass substrate (11), an organic light-emitting diode (12) arranged on said glass substrate (11), and; a glass cover (13) which is arranged over the organic light-emitting diode (12) and which is glued, on the edge (14), to the glass substrate (11). The glass cover is made from a glass plate by three-dimensionally removing material from the same using a beam method.

(57) Zusammenfassung: Die Bauelemente nach der Erfindung weisen folgende Komponenten auf: ein Glassubstrat (11), eine auf dem Glassubstrat (11) angeordnete organische lichtemittierende Diode (12) und eine über der organischen lichtemittierenden Diode (12) angeordnete Glaskappe (13), die am Rand (14) mit dem Glassubstrat (11) verklebt ist, wobei die Glaskappe aus einer Glasplatte durch dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines Strahlverfahrens hergestellt ist.

WO 01/18886 A3

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 00/03108

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 H01L51/20 H05B33/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01L H05B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

INSPEC, EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| X | EP 0 910 228 A (TDK CORP) 21 April 1999 (1999-04-21) the whole document --- | 1-6 |
| X | EP 0 781 075 A (IDEMITSU KOSAN CO) 25 June 1997 (1997-06-25) the whole document --- | 1,3-5 |
| A | | 6 |
| X | GB 1 366 678 A (GEN ELECTRIC CO) 11 September 1974 (1974-09-11) the whole document --- | 1,3,5 |
| A | | 6 |
| X | EP 0 776 147 A (PIONEER ELECTRONIC CO) 28 May 1997 (1997-05-28) cited in the application the whole document --- | 1,3 |
| A | | 6 |
| | -/-- | |

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *&* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

22 February 2001

Date of mailing of the international search report

01/03/2001

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

van der Linden, J.E.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 00/03108

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| P, X | EP 0 969 700 A (TDK CORP) 5 January 2000 (2000-01-05) the whole document --- | 1, 3-5 |
| E | WO 00 69002 A (DOW CHEMICAL CO) 16 November 2000 (2000-11-16) the whole document ----- | 1, 3-6 |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 00/03108

| Patent document cited in search report | | Publication date | Patent family member(s) | | Publication date |
|---|---|---------------------|----------------------------|--------------|---------------------|
| EP 0910228 | A | 21-04-1999 | JP | 11121167 A | 30-04-1999 |
| EP 0781075 | A | 25-06-1997 | JP | 8078159 A | 22-03-1996 |
| | | | JP | 9035868 A | 07-02-1997 |
| | | | US | 5962962 A | 05-10-1999 |
| | | | WO | 9608122 A | 14-03-1996 |
| GB 1366678 | A | 11-09-1974 | DE | 2254044 A | 10-05-1973 |
| EP 0776147 | A | 28-05-1997 | JP | 9148066 A | 06-06-1997 |
| | | | US | 5882761 A | 16-03-1999 |
| EP 0969700 | A | 05-01-2000 | JP | 2000003783 A | 07-01-2000 |
| WO 0069002 | A | 16-11-2000 | NONE | | |

1

1

2

1

2

INTERNATIONALER RESEARCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/03108

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 H01L51/20 H05B33/04

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 H01L H05B

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

INSPEC, EPO-Internal, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|--|--------------------|
| X | EP 0 910 228 A (TDK CORP) 21. April 1999 (1999-04-21) das ganze Dokument | 1-6 |
| X | EP 0 781 075 A (IDEMITSU KOSAN CO) 25. Juni 1997 (1997-06-25) das ganze Dokument | 1, 3-5 |
| A | --- | 6 |
| X | GB 1 366 678 A (GEN ELECTRIC CO) 11. September 1974 (1974-09-11) das ganze Dokument | 1, 3, 5 |
| A | --- | 6 |
| X | EP 0 776 147 A (PIONEER ELECTRONIC CO) 28. Mai 1997 (1997-05-28) in der Anmeldung erwähnt | 1, 3 |
| A | das ganze Dokument | 6 |
| | --- | |
| | ---/--- | |

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

22. Februar 2001

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

01/03/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

van der Linden, J.E.

| C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN | | |
|--|--|--------------------|
| Kategorie° | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
| P,X | EP 0 969 700 A (TDK CORP) 5. Januar 2000 (2000-01-05) das ganze Dokument --- | 1,3-5 |
| E | WO 00 69002 A (DOW CHEMICAL CO) 16. November 2000 (2000-11-16) das ganze Dokument ----- | 1,3-6 |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/03108

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument | | Datum der Veröffentlichung | Mitglied(er) der Patentfamilie | | Datum der Veröffentlichung |
|--|---|-------------------------------|-----------------------------------|--------------|-------------------------------|
| EP 0910228 | A | 21-04-1999 | JP | 11121167 A | 30-04-1999 |
| EP 0781075 | A | 25-06-1997 | JP | 8078159 A | 22-03-1996 |
| | | | JP | 9035868 A | 07-02-1997 |
| | | | US | 5962962 A | 05-10-1999 |
| | | | WO | 9608122 A | 14-03-1996 |
| GB 1366678 | A | 11-09-1974 | DE | 2254044 A | 10-05-1973 |
| EP 0776147 | A | 28-05-1997 | JP | 9148066 A | 06-06-1997 |
| | | | US | 5882761 A | 16-03-1999 |
| EP 0969700 | A | 05-01-2000 | JP | 2000003783 A | 07-01-2000 |
| WO 0069002 | A | 16-11-2000 | KEINE | | |

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

Absender: MIT DER INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN
PRÜFUNG BEAUFTRAGTE BEHÖRDE

An:

SIEMENS AG
Postfach 22 16 34
80506 München
ALLEMAGNE

CT IPS AM Mch P/Ri

Eing. 30. Okt. 2001

GR
Frist

09.01.02

PCT

MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERSENDUNG
DES INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN
PRÜFUNGSBERICHTS

(Regel 71.1 PCT)

Absendedatum
(Tag/Monat/Jahr)

29.10.2001

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts
1999PO3623Wo

WICHTIGE MITTEILUNG

Internationales Aktenzeichen
PCT/DE00/03108

Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)
07/09/2000

Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)
09/09/1999

Anmelder

SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT et al.

1. Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß ihm die mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde hiermit den zu der internationalen Anmeldung erstellten internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen, übermittelt.
2. Eine Kopie des Berichts wird - gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen - dem Internationalen Büro zur Weiterleitung an alle ausgewählten Ämter übermittelt.
3. Auf Wunsch eines ausgewählten Amts wird das Internationale Büro eine Übersetzung des Berichts (jedoch nicht der Anlagen) ins Englische anfertigen und diesem Amt übermitteln.

4. ERINNERUNG

Zum Eintritt in die nationale Phase hat der Anmelder vor jedem ausgewählten Amt innerhalb von 30 Monaten ab dem Prioritätsdatum (oder in manchen Ämtern noch später) bestimmte Handlungen (Einreichung von Übersetzungen und Entrichtung nationaler Gebühren) vorzunehmen (Artikel 39 (1)) (siehe auch die durch das Internationale Büro im Formblatt PCT/IB/301 übermittelte Information).

Ist einem ausgewählten Amt eine Übersetzung der internationalen Anmeldung zu übermitteln, so muß diese Übersetzung auch Übersetzungen aller Anlagen zum internationalen vorläufigen Prüfungsbericht enthalten. Es ist Aufgabe des Anmelders, solche Übersetzungen anzufertigen und den betroffenen ausgewählten Ämtern direkt zuzuleiten.

Weitere Einzelheiten zu den maßgebenden Fristen und Erfordernissen der ausgewählten Ämter sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung
beauftragten Behörde



Europäisches Patentamt
D-80298 München
Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d
Fax: +49 89 2399 - 4465

Bevollmächtigter Bediensteter

Reddy, J

Tel. +49 89 2399-2231



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

| | | |
|--|--|---|
| Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 1999PO3623Wo | WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416) | |
| Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/03108 | Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 07/09/2000 | Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 09/09/1999 |
| Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK H01L51/00 | | |
| Anmelder SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT et al. | | |



1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☒ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☒ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

| | |
|--|--|
| Datum der Einreichung des Antrags 30/03/2001 | Datum der Fertigstellung dieses Berichts 29.10.2001 |
| Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465 | Bevollmächtigter Bediensteter Werner, A Tel. Nr. +49 89 2399 2272  |

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1-12 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

2-5 ursprüngliche Fassung

1,6-10 eingegangen am 19/09/2001 mit Schreiben vom 16/09/2001

Zeichnungen, Blätter:

1/1 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/03108

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

| | | |
|--------------------------------|-----------------|------|
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche | |
| | Nein: Ansprüche | 1-5 |
| Erfinderische Tätigkeit (ET) | Ja: Ansprüche | |
| | Nein: Ansprüche | 6-10 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (GA) | Ja: Ansprüche | 1-10 |
| | Nein: Ansprüche | |

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:
siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken:
siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: EP-A-0 910 228 (TDK CORP) 21. April 1999 (1999-04-21)

D2: EP-A-0 781 075 (IDEMITSU KOSAN CO) 25. Juni 1997 (1997-06-25)

2. Der Gegenstand der Ansprüche 1-5 ist nicht neu (Art. 33(2) PCT).

D1 (siehe Ansprüche 1,6,7, Fig. 1) alle Merkmale dieser Ansprüche. Der Verfahrensschritt "Sandstrahlverfahren(s) unter Verwendung.." in den Gegenstandsansprüchen wird nicht berücksichtigt, siehe Punkt VIII.

3. Der Gegenstand der Ansprüche 6-10 beruht nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit (Art. 33(3) PCT).

Der wesentliche Unterschied zwischen dem Verfahren nach den Ansprüchen 6-9 und dem Verfahren nach D1 besteht in der Geometrie Sandstrahlapparates und in den spezifischen Prozessparametern des Sandstrahlverfahrens. Diese Werte sind das Resultat von Standardversuchen. Der zusätzliche Schritt nach Anspruch 10 liegt nahe.

Zu Punkt VII

B stimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Im Widerspruch zu den Erfordernissen der Regel 5.1 a) ii) PCT werden in der Beschreibung weder der in den Dokumenten D1 und D2 offenbarte einschlägige Stand der Technik noch diese Dokumente angegeben.

Zu Punkt VIII

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung



**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER
PRÜFUNGSBERICHT - BEIBLATT**

Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/03108

Das Bauelement nach Anspruch 1 wird durch ein Verfahren ("Materialabtrag mittels eines Strahlverfahrens unter Verwendung...") definiert, wodurch seine Kategorie unklar wird (Art. 6 PCT).



16.09.01

1

Neue Patentansprüche 1, 6 bis 10

1. Bauelemente, gekennzeichnet durch
ein Glassubstrat (1)

- 5 • eine auf dem Glassubstrat (11) angeordnete organische
lichtemittierende Diode (12) und
• eine über der organischen lichtemittierenden Diode (12)
angeordnete und am Rand (14) mit dem Glassubstrat (11)
10 verklebte Glaskappe (13), die aus einer Glasplatte durch
dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines
Sandstrahlverfahrens unter Verwendung von handelsüblichem
Edelkorund mit einer mittleren Korngröße von 30µm und
einem Strahldruck von 5 bar, hergestellt ist.

- 15 6. Verfahren zur Herstellung von Bauelementen nach einem oder
mehreren der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass
in einer Glasplatte durch dreidimensionalen Materialabtrag
mittels eines ersten Sandstrahlverfahrens unter Verwendung
von handelsüblichem Edelkorund mit einer mittleren Korngröße
20 von 30µm und einem Strahldruck von 5 bar eine Vielzahl von
Aussparungen mit durch jeweils eine Lackschicht geschützten
Kanten erzeugt wird, die Schutzschicht der Kanten dann
abgezogen wird und die freiliegenden Ränder der Aussparungen
einem weiteren Sandstrahlverfahren unterworfen werden, bei
25 dem Korund einer mittleren Korngröße von 9µm und ein
Strahldruck von nur 3 bar verwendet wird.

7. Verfahren nach Anspruch 6, bei dem im ersten
Sandstrahlverfahren als Strahldüse eine Injektorstrahldüse
30 verwendet wird.

8. Verfahren nach einem der Ansprüche 6 oder 7, bei dem im
ersten Sandstrahlverfahren der Abstand zwischen Düse und
Werkstück 80 mm beträgt.

35

9. Verfahren nach einem der Ansprüche 6 bis 8, bei dem im
zweiten Sandstrahlverfahren bei einer Strahlzeit von 30s



16.09.01

2

Kanten mit einer Rauigkeit von etwa 30rms hergestellt werden.

10. Verfahren nach einem der Ansprüche 6 bis 9, bei dem nach
5 Fertigstellung der Aussparungen die Glasplatte verwendet
wird, um eine entsprechende Anzahl auf einem Substrat
entsprechend angeordneter organischer lichtemittierender
Dioden zu verkapseln und wobei auf die Verkapselung folgend
die dabei erhaltenen Bauelemente zumindest teilweise
10 vereinzelt werden.

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

Absender: INTERNATIONALE RECHERCHENBEHÖRDE

PCT

An
SIEMENS AG
Postfach 22 16 34
80506 München
GERMANY

MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERMITTLUNG DES
INTERNATIONALEN RECHERCHENBERICHTS
ODER DER ERKLÄRUNG

(Regel 44.1 PCT)

| | |
|-------------|---------------|
| ZT | 1 Mch P/Ri |
| Eing. | 01. März 2001 |
| GR Frist | 09.04.01 |

Absendedatum
(Tag/Monat/Jahr) 01/03/2001

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts
1999P03623Wo

WEITERES VORGEHEN siehe Punkte 1 und 4 unten

Internationales Aktenzeichen
PCT/DE 00/03108

Internationales Anmeldedatum
(Tag/Monat/Jahr) 07/09/2000

Anmelder
SIEMENS AG

1. ☒ Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß der internationale Recherchenbericht erstellt wurde und ihm hiermit übermittelt wird.

Einreichung von Änderungen und einer Erklärung nach Artikel 19:

Der Anmelder kann auf eigenen Wunsch die Ansprüche der internationalen Anmeldung ändern (siehe Regel 46):

Bis wann sind Änderungen einzureichen?

Die Frist zur Einreichung solcher Änderungen beträgt üblicherweise zwei Monate ab der Übermittlung des internationalen Recherchenberichts; weitere Einzelheiten sind den Anmerkungen auf dem Beiblatt zu entnehmen.

Wo sind Änderungen einzureichen?

Unmittelbar beim Internationalen Büro der WIPO, 34, CHEMIN des Colombettes, CH-1211 Genf 20,
Telefaxnr.: (41-22) 740.14.35

Nähere Hinweise sind den Anmerkungen auf dem Beiblatt zu entnehmen.

2. ☐ Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß kein internationaler Recherchenbericht erstellt wird und daß ihm hiermit die Erklärung nach Artikel 17(2)a übermittelt wird.

3. ☐ Hinsichtlich des Widerspruchs gegen die Entrichtung einer zusätzlichen Gebühr (zusätzlicher Gebühren) nach Regel 40.2 wird dem Anmelder mitgeteilt, daß

☐ der Widerspruch und die Entscheidung hierüber zusammen mit seinem Antrag auf Übermittlung des Wortlauts sowohl des Widerspruchs als auch der Entscheidung hierüber an die Bestimmungsbüro dem Internationalen Büro übermittelt worden sind.

☐ noch keine Entscheidung über den Widerspruch vorliegt; der Anmelder wird benachrichtigt, sobald eine Entscheidung getroffen wurde.


4. **Weiteres Vorgehen:** Der Anmelder wird auf folgendes aufmerksam gemacht:

Kurz nach Ablauf von **18 Monaten** seit dem Prioritätsdatum wird die internationale Anmeldung vom Internationalen Büro veröffentlicht. Will der Anmelder die Veröffentlichung verhindern oder auf einen späteren Zeitpunkt verschieben, so muß gemäß Regel 90^{bis} bzw. 90^{ter} vor Abschluß der technischen Vorbereitungen für die internationale Veröffentlichung eine Erklärung über die Zurücknahme der internationalen Anmeldung oder des Prioritätsanspruchs beim Internationalen Büro eingehen.

Innerhalb von **19 Monaten** seit dem Prioritätsdatum ist ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung einzureichen, wenn der Anmelder den Eintritt in die nationale Phase bis zu 30 Monaten seit dem Prioritätsdatum (in manchen Ämtern sogar noch länger) verschieben möchte.

Innerhalb von **20 Monaten** seit dem Prioritätsdatum muß der Anmelder die für den Eintritt in die nationale Phase vorgeschriebenen Handlungen vor allen Bestimmungsbüro vornehmen, die nicht innerhalb von 19 Monaten seit dem Prioritätsdatum in der Anmeldung oder einer nachträglichen Auswählerklärung ausgewählt wurden oder nicht ausgewählt werden konnten, da für sie Kapitel II des Vertrages nicht verbindlich ist.

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

 Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL-2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Marjory Sastropawiro



ANMERKUNGEN ZU FORMBLATT PCT/ISA/220

Diese Anmerkungen sollen grundlegende Hinweise zur Einreichung von Änderungen gemäß Artikel 19 geben. Diesen Anmerkungen liegen die Erfordernisse des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens (PCT), der Ausführungsordnung und der Verwaltungsrichtlinien zu diesem Vertrag zugrunde. Bei Abweichungen zwischen diesen Anmerkungen und obengenannten Texten sind letztere maßgebend. Nähere Einzelheiten sind dem PCT-Leitfaden für Anmelder, einer Veröffentlichung der WIPO, zu entnehmen.

Die in diesen Anmerkungen verwendeten Begriffe "Artikel", "Regel" und "Abschnitt" beziehen sich jeweils auf die Bestimmungen des PCT-Vertrags, der PCT-Ausführungsordnung bzw. der PCT-Verwaltungsrichtlinien.

HINWEISE ZU ÄNDERUNGEN GEMÄSS ARTIKEL 19

Nach Erhalt des internationalen Recherchenberichts hat der Anmelder die Möglichkeit, einmal die Ansprüche der internationalen Anmeldung zu ändern. Es ist jedoch zu betonen, daß, da alle Teile der internationalen Anmeldung (Ansprüche, Beschreibung und Zeichnungen) während des internationalen vorläufigen Prüfungsverfahrens geändert werden können, normalerweise keine Notwendigkeit besteht, Änderungen der Ansprüche nach Artikel 19 einzureichen, außer wenn der Anmelder z.B. zum Zwecke eines vorläufigen Schutzes die Veröffentlichung dieser Ansprüche wünscht oder ein anderer Grund für eine Änderung der Ansprüche vor ihrer internationalen Veröffentlichung vorliegt. Weiterhin ist zu beachten, daß ein vorläufiger Schutz nur in einigen Staaten erhältlich ist.

Welche Teile der internationalen Anmeldung können geändert werden?

Im Rahmen von Artikel 19 können nur die Ansprüche geändert werden.

In der internationalen Phase können die Ansprüche auch nach Artikel 34 vor der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde geändert (oder nochmals geändert) werden. Die Beschreibung und die Zeichnungen können nur nach Artikel 34 vor der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde geändert werden.

Beim Eintritt in die nationale Phase können alle Teile der internationalen Anmeldung nach Artikel 28 oder gegebenenfalls Artikel 41 geändert werden.

Bis wann sind Änderungen einzureichen?

Innerhalb von zwei Monaten ab der Übermittlung des internationalen Recherchenberichts oder innerhalb von sechs Monaten ab dem Prioritätsdatum, je nachdem, welche Frist später abläuft. Die Änderungen gelten jedoch als rechtzeitig eingereicht, wenn sie dem Internationalen Büro nach Ablauf der maßgebenden Frist, aber noch vor Abschluß der technischen Vorbereitungen für die internationale Veröffentlichung (Regel 46.1) zugehen.

Wo sind die Änderungen nicht einzureichen?

Die Änderungen können nur beim Internationalen Büro, nicht aber beim Anmeldeamt oder der internationalen Recherchenbehörde eingereicht werden (Regel 46.2).

Falls ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung eingereicht wurde/wird, siehe unten.

In welcher Form können Änderungen erfolgen?

Eine Änderung kann erfolgen durch Streichung eines oder mehrerer ganzer Ansprüche, durch Hinzufügung eines oder mehrerer neuer Ansprüche oder durch Änderung des Wortlauts eines oder mehrerer Ansprüche in der eingereichten Fassung.

Für jedes Anspruchsblatt, das sich aufgrund einer oder mehrerer Änderungen von dem ursprünglich eingereichten Blatt unterscheidet, ist ein Ersatzblatt einzureichen.

Alle Ansprüche, die auf einem Ersatzblatt erscheinen, sind mit arabischen Ziffern zu numerieren. Wird ein Anspruch gestrichen, so brauchen, die anderen Ansprüche nicht neu numeriert zu werden. Im Fall einer Neunumerierung sind die Ansprüche fortlaufend zu numerieren (Verwaltungsrichtlinien, Abschnitt 205 b)).

Die Änderungen sind in der Sprache abzufassen, in der die internationale Anmeldung veröffentlicht wird.

Welche Unterlagen sind den Änderungen beizufügen?

Begleitschreiben (Abschnitt 205 b)):

Die Änderungen sind mit einem Begleitschreiben einzureichen.

Das Begleitschreiben wird nicht zusammen mit der internationalen Anmeldung und den geänderten Ansprüchen veröffentlicht. Es ist nicht zu verwechseln mit der "Erklärung nach Artikel 19(1)" (siehe unten, "Erklärung nach Artikel 19 (1)").

Das Begleitschreiben ist nach Wahl des Anmelders in englischer oder französischer Sprache abzufassen. Bei englischsprachigen internationalen Anmeldungen ist das Begleitschreiben aber ebenfalls in englischer, bei französischsprachigen internationalen Anmeldungen in französischer Sprache abzufassen.



ANMERKUNGEN ZU FORMBLATT PCT/ISA/220 (Fortsetzung)

Im Begleitschreiben sind die Unterschiede zwischen den Ansprüchen in der eingereichten Fassung und den geänderten Ansprüchen anzugeben. So ist insbesondere zu jedem Anspruch in der internationalen Anmeldung anzugeben (gleichlautende Angaben zu verschiedenen Ansprüchen können zusammengefaßt werden), ob

- i) der Anspruch unverändert ist;
- ii) der Anspruch gestrichen worden ist;
- iii) der Anspruch neu ist;
- iv) der Anspruch einen oder mehrere Ansprüche in der eingereichten Fassung ersetzt;
- v) der Anspruch auf die Teilung eines Anspruchs in der eingereichten Fassung zurückzuführen ist.

Im folgenden sind Beispiele angegeben, wie Änderungen im Begleitschreiben zu erläutern sind:

1. [Wenn anstelle von ursprünglich 48 Ansprüchen nach der Änderung einiger Ansprüche 51 Ansprüche existieren]:
"Die Ansprüche 1 bis 29, 31, 32, 34, 35, 37 bis 48 werden durch geänderte Ansprüche gleicher Numerierung ersetzt; Ansprüche 30, 33 und 36 unverändert; neue Ansprüche 49 bis 51 hinzugefügt."
2. [Wenn anstelle von ursprünglich 15 Ansprüchen nach der Änderung aller Ansprüche 11 Ansprüche existieren]:
"Geänderte Ansprüche 1 bis 11 treten an die Stelle der Ansprüche 1 bis 15."
3. [Wenn ursprünglich 14 Ansprüche existierten und die Änderungen darin bestehen, daß einige Ansprüche gestrichen werden und neue Ansprüche hinzugefügt werden]:
Ansprüche 1 bis 6 und 14 unverändert; Ansprüche 7 bis 13 gestrichen; neue Ansprüche 15, 16 und 17 hinzugefügt. "Oder" Ansprüche 7 bis 13 gestrichen; neue Ansprüche 15, 16 und 17 hinzugefügt; alle übrigen Ansprüche unverändert."
4. [Wenn verschiedene Arten von Änderungen durchgeführt werden]:
"Ansprüche 1-10 unverändert; Ansprüche 11 bis 13, 18 und 19 gestrichen; Ansprüche 14, 15 und 16 durch geänderten Anspruch 14 ersetzt; Anspruch 17 in geänderte Ansprüche 15, 16 und 17 unterteilt; neue Ansprüche 20 und 21 hinzugefügt."

"Erklärung nach Artikel 19(1)" (Regel 46.4)

Den Änderungen kann eine Erklärung beigelegt werden, mit der die Änderungen erläutert und ihre Auswirkungen auf die Beschreibung und die Zeichnungen dargelegt werden (die nicht nach Artikel 19 (1) geändert werden können).

Die Erklärung wird zusammen mit der internationalen Anmeldung und den geänderten Ansprüchen veröffentlicht.

Sie ist in der Sprache abzufassen, in der die internationale Anmeldung veröffentlicht wird.

Sie muß kurz gehalten sein und darf, wenn in englischer Sprache abgefaßt oder ins Englische übersetzt, nicht mehr als 500 Wörter umfassen.

Die Erklärung ist nicht zu verwechseln mit dem Begleitschreiben, das auf die Unterschiede zwischen den Ansprüchen in der eingereichten Fassung und den geänderten Ansprüchen hinweist, und ersetzt letzteres nicht. Sie ist auf einem gesonderten Blatt einzureichen und in der Überschrift als solche zu kennzeichnen, vorzugsweise mit den Worten "Erklärung nach Artikel 19 (1)".

Die Erklärung darf keine herabsetzenden Äußerungen über den internationalen Recherchenbericht oder die Bedeutung von in dem Bericht angeführten Veröffentlichungen enthalten. Sie darf auf im internationalen Recherchenbericht angeführte Veröffentlichungen, die sich auf einen bestimmten Anspruch beziehen, nur im Zusammenhang mit einer Änderung dieses Anspruchs Bezug nehmen.

Auswirkungen eines bereits gestellten Antrags auf internationale vorläufige Prüfung

Ist zum Zeitpunkt der Einreichung von Änderungen nach Artikel 19 bereits ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung gestellt worden, so sollte der Anmelder in seinem Interesse gleichzeitig mit der Einreichung der Änderungen beim Internationalen Büro auch eine Kopie der Änderungen bei der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde einreichen (siehe Regel 62.2 a), erster Satz).

Auswirkungen von Änderungen hinsichtlich der Übersetzung der internationalen Anmeldung beim Eintritt in die nationale Phase

Der Anmelder wird darauf hingewiesen, daß bei Eintritt in die nationale Phase möglicherweise anstatt oder zusätzlich zu der Übersetzung der Ansprüche in der eingereichten Fassung eine Übersetzung der nach Artikel 19 geänderten Ansprüche an die bestimmten/ausgewählten Ämter zu übermitteln ist.

Nähere Einzelheiten über die Erfordernisse jedes bestimmten/ausgewählten Amtes sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

Spalte 1: Kategorie (Column 1: Category)

Es bedeutet: (It means:)

- X: Druckschriften, die Neuheit oder Erfindungshöhe allein in Frage stellen

(Publications, which question novelty or just obviousness)
- Y: Druckschriften, die die Erfindungshöhe zusammen mit anderen Druckschriften in Frage stellen

(Publications which, together with other publications, question obviousness)
- A: Allgemein zum Stand der Technik, technologischer Hintergrund
(General state of the art, technological background)
- O: Nicht-schriftliche Offenbarung, z. B. ein in einer nachveröffentlichten Druckschrift abgedruckter Vortrag, der vor dem Anmelde- oder Prioritätstag öffentlich gehalten wurde

(Non-written disclosure, for example, a printed post publication of a lecture which was publically made before the filing date or priority date)
- P: Im Prioritätsintervall veröffentlichte Druckschriften

(Publications publicized in a priority interval)
- T: Nachveröffentlichte, nicht kollidierende Druckschriften, die die Theorie der angemeldeten Erfindung betreffen und für ein besseres Verständnis der angemeldeten Erfindung nützlich sein können bzw. zeigen, daß der angemeldeten Erfindung zugrunde liegende Gedankengänge oder Sachverhalte falsch sein könnten

(Post publications, not anticipating publications, which refer to the theory of the filed invention and which could be useful for a better understanding or, as the case may be, which could show that reasoning or facts of the filed invention are incorrect)
- E: Ältere Anmeldungen gemäß §3 Abs. 2 PatG (bei Recherchen nach §43 PatG); ältere Patentanmeldungen oder ältere Gebrauchsmuster gemäß §15 GbmG (bei Recherchen nach §7 GbmG)



(Older applications under §3 Section PatG (inquiries under §43 PatG); older patent applications or patents under §15 GbmG (inquiries under §7 GbmG))

D: Druckschriften, die bereits in der Patentanmeldung genannt sind

(Publications, which are cited in the patent application)

L: Aus besonderen Gründen genannte Druckschriften, z. B. zum Veröffentlichungstag einer Entgegnung oder bei Zweifeln an der Priorität.

(Publications which are cited for a particular reason, for example, relative to the publication date of a reference or cast doubt on the priority).

Spalte 2: Ermittelte Druckschriften / Erläuterungen
(Column 2: Discovered Publications / Explanations)

Veröff.: Veröffentlichungstag einer Druckschrift im
Prioritätsintervall

(Publication date of a publication in a priority interval)

nr: Nicht recherchiert, da allgemein bekannter Stand
der Technik, oder nicht recherchierbar

(Not searched, because it is known state of the art, or cannot be searched)

=: Druckschriften, die auf dieselbe Ursprungsanmeldung
zurückgehen ("Patentfamilien") oder auf die sich
Referate oder Abstracts beziehen.

(Publications, which refer to the same original application ("patent family"), or which are referred to in reviews or abstracts.)

"-": Nichts ermittelt

(Nothing discovered)

Spalte 3: Betroffene Ansprüche (Column 3: Relevant Claims)

Hier sind die Ansprüche unter Zuordnung zu den in Spalte 2 genannten relevanten Stellen angegeben.

(The claims are stated herein which refer to the relevant positions recited in column 2.)



Other Terms

| | |
|-----------------|--------------------------|
| Seite | (page) |
| Zeile | (line) |
| Abbildungen | (Drawings) |
| Spalte | (Column) |
| Absatz | (Paragraph) |
| Zusammenfassung | (Abstract of Disclosure) |



•

4

•

•

—

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202
ETATS-UNIS D'AMERIQUE
in its capacity as elected Office

| | |
|--|--|
| Date of mailing (day/month/year) 15 August 2001 (15.08.01) | |
| International application No. PCT/DE00/03108 | Applicant's or agent's file reference 1999P03623Wo |
| International filing date (day/month/year) 07 September 2000 (07.09.00) | Priority date (day/month/year) 09 September 1999 (09.09.99) |
| Applicant HAMANN, Christoph et al | |

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
30 March 2001 (30.03.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

| | |
|---|--|
| The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35 | Authorized officer Antonia Muller Telephone No.: (41-22) 338.83.38 |
|---|--|

Beschreibung

Bauelemente und deren Herstellung

- 5 Die Erfindung betrifft Bauelemente und ein Verfahren zur Herstellung von Bauelementen.

Bauelemente weisen ein optoelektronisches Funktionselement auf, das im allgemeinen auf einem Substrat, insbesondere
10 einem Glassubstrat, angeordnet ist. Das optoelektronische Funktionselement kann eine lichtemittierende Diode (LED) sein, beispielsweise eine organische lichtemittierende Diode (OLED).

- 15 LEDs bzw. OLEDs bestehen aus mehreren Funktionsschichten und weisen beispielsweise folgenden Aufbau auf (siehe dazu: „Philips Journal of Research“, Vol. 51 (1998), Seiten 467 bis 477): Eine dünne ITO-Schicht (ITO = Indium Tin Oxide) als transparente Elektrode, eine leitende Polymerschicht, eine
20 elektrolumineszierende Schicht, d.h. eine Schicht aus lichtemittierendem Material, insbesondere aus einem lichtemittierenden Polymer, und eine Elektrode aus einem Metall mit geringer Austrittsarbeit.

- 25 Da die zum Aufbau von LEDs bzw. OLEDs verwendeten Materialien teilweise sehr empfindlich gegenüber Wasser und Sauerstoff sind, müssen sie gegen Umwelteinflüsse abgekapselt werden, d.h. sie werden in einem Gehäuse angeordnet. Dies kann beispielsweise in der Weise geschehen, daß die auf einem Glas-
30 substrat angeordnete LED bzw. OLED mit einer Glasplatte abgedeckt wird und diese Glasplatte mit dem Glassubstrat verklebt wird (siehe dazu: „Applied Physics Letters“, Vol. 65 (1994), Seiten 2922 bis 2924). Die Verklebung erfolgt beispielsweise mit einem Epoxidharz. Hierbei ist allerdings eine
35 relativ dicke Klebefuge erforderlich, so daß über die Klebeschicht Feuchtigkeit in den Hohlraum zwischen Glassubstrat und Glasplatte eindringen kann.

Es ist auch bereits eine elektrolumineszierende Anordnung bekannt, bei der das Gehäuse, in welches das eine elektrolumineszierende organische Schicht aufweisende elektrolumineszierende Element eingeschlossen ist, eine Schicht aus einem niedrigschmelzenden Metall oder einer entsprechenden Legierung umfaßt, die mittels einer Klebeschicht an ein das elektrolumineszierende Element tragende Substrat gebunden ist (siehe: WO 97/46052). Auf diese Weise kann zwar eine hohe Dichtigkeit der elektrolumineszierenden Anordnung erreicht werden, dies ist aber mit einem großen Aufwand und hohen Kosten verbunden. Ein weiterer Nachteil besteht darin, daß durch die relativ hohen Temperaturen, die zur Verarbeitung des Metalls bzw. der Legierung aus der Schmelze erforderlich sind, das elektrolumineszierende Element geschädigt werden kann.

Dies gilt im Prinzip auch bei einem Verfahren, bei dem das organische Funktionselement, insbesondere eine OLED, unter Verwendung von Glaslot eingekapselt wird (deutsche Patentanmeldung Akt.Z. 198 45 075.3). Die für das Prozessieren heutzutage verfügbarer Glaslote notwendigen Temperaturen führen nämlich bei OLEDs zu einer Schädigung der funktionellen organischen Materialien. Außerdem ist hierbei zwischen dem Deckel des Gehäuses und dem Glassubstrat ein zusätzlicher Rahmen angeordnet, um eine mechanische Schädigung des OLED-Aufbaus zu vermeiden. Dies bedeutet aber zusätzliche Arbeitsschritte und Klebefugen, verbunden mit der Gefahr von Undichtigkeiten.

Aus der EP-OS 0 776 147 ist eine organische elektrolumineszierende Anordnung bekannt, bei der die lichtemittierende Diode in einem luftdichten Behälter angeordnet ist, um sie von der externen Atmosphäre abzuschildern. Im Behälter ist außerdem - getrennt von der Diode - eine Substanz zur chemischen Absorption von Feuchtigkeit im Innenraum vorhanden. Der Behälter besteht aus einem Dichtungsgehäuse, einem transparenten Substrat, das dieses Gehäuse bedeckt, und einem

Dichtungsmittel, welches das Substrat an das Gehäuse bindet. Gehäuse und Substrat können aus Glas bestehen.

Glasgehäuse werden üblicherweise durch Gießen oder Umformen, d.h. Pressen, hergestellt. Die dabei erhaltenen Behälter sind aber wenig präzise und die Oberflächen sind glatt. Außerdem sind die Oberflächen nicht hinreichend plan. Beim Versiegeln von OLEDs müssen die Klebeflächen aber - mit einer Toleranz von wenigen Mikrometern - plan sein. Deshalb ist bei derartigen Behältern ein aufwendiges Nachbearbeiten der Klebeflächen erforderlich.

Aufgabe der Erfindung ist es, Bauelemente, die ein optoelektronisches Funktionselement enthalten, derart auszugestalten, daß einerseits das Funktionselement hermetisch gekapselt ist, d.h. durch Umwelteinflüsse, wie Wasser und Luft, nicht beeinträchtigt wird und auch nicht mechanisch beschädigt werden kann, und daß andererseits die Kapselung in relativ einfacher Weise realisiert werden kann.

20

Dies wird erfindungsgemäß durch Bauelemente erreicht, die folgende Komponenten aufweisen:

- ein Glassubstrat
- eine auf dem Glassubstrat angeordnete organische lichtemittierende Diode und
- eine über der organischen lichtemittierenden Diode angeordnete und am Rand mit dem Glassubstrat verklebte Glaskappe, die aus einer Glasplatte durch dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines Strahlverfahrens hergestellt ist.

30

Bei den Bauelementen nach der Erfindung bildet die Glaskappe zusammen mit dem Glassubstrat einen stabilen Hohlraum, in dem die OLED angeordnet ist; eine mechanische Schädigung ist somit ausgeschlossen. Auch eine Schädigung durch Umwelteinflüsse tritt nicht auf, weil die Bauelemente hermetisch ab-

35

gekapselt, d.h. dicht verschlossen sind, wozu lediglich eine sehr schmale Klebefuge erforderlich ist.

Die Verwendung von Glaskappen - anstelle von Überzügen aus Metall - in Verbindung mit Glassubstraten hat den Vorteil, daß Gläser mit angepaßtem thermischen Ausdehnungskoeffizient verwendet werden können. Dadurch läßt sich der mechanische Streß auf die Klebefuge, wie er beispielsweise infolge einer thermischen Belastung des Bauelements durch Temperaturzyklen entsteht, minimieren.

Die Glaskappe, die zugleich Abdeckung und Rahmen ist, wird aus einer Glasplatte hergestellt, und zwar durch einen dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines Strahlverfahrens. Hierbei wird - mit hoher Präzision - eine Aussparung mit definierter Geometrie und Tiefe gebildet. Eine derartige Vorgehensweise ist im Prinzip bekannt, und zwar zum Einbringen von Tintenwannen und Durchbrüchen in die Deckgläser von Tintendruckköpfen (siehe dazu: DE-PS 40 18 132).

Die Glaskappen können durch Sandstrahlen hergestellt werden, d.h. mittels Quarzsand. Als Strahlmittel kann beispielsweise aber auch Aluminiumoxid, Siliciumoxid, Siliciumcarbid oder Borcarbid verwendet werden.

Vorzugsweise erfolgt der Materialabtrag von der Glasplatte durch Strahlspanen. Dieses Fertigungsverfahren sowie die dabei verwendeten Strahlmittel sind DIN 8200 zu entnehmen. Die Abtragsrate bzw. die erzielbare Tiefe der Aussparung ist abhängig von der Relativbewegung zwischen Werkstück und Strahldüse, von der Art des Strahlmittels, von dessen mittlerem Durchmesser, vom Strahldruck und vom Abstand der Düse zum Substrat.

Die Glaskappen nach der Erfindung können somit in einfacher Weise hergestellt werden und es ist auch keine aufwendige Nachbearbeitung erforderlich, wie es bei in üblicher Weise



hergestellten Glasgehäusen der Fall ist. Diese Glasgehäuse fallen außerdem einzeln an, und sie müssen daher beim Verkleben einzeln positioniert und prozessiert werden. Eine Einzelprozessierung ist aber teuer und für eine Massenfertigung, wie sie in der Displaytechnik üblich ist, nicht geeignet.

Im Gegensatz dazu können die Glaskappen nach der Erfindung sehr einfach auch in großen Nutzen hergestellt werden. In der Displaytechnik sind heutzutage Nutzengrößen von 16 inch x 16 inch und größer üblich. Die dafür notwendigen Glaskappen müssen für eine Massenfertigung in der gleichen Nutzengröße herstellbar sein. Dies läßt sich sehr einfach in der Weise realisieren, daß entsprechende Glasplatten über photolithographische Prozesse strukturiert werden und durch ein Strahlverfahren beispielsweise bis zu 150 Aussparungen - mit der gewünschten Form und Tiefe - in der Glasplatte erzeugt werden. Die Vereinzelung kann dann nach bekannten Verfahren erfolgen und findet in der Regel erst nach dem Fügeprozeß statt. Eine besonders bevorzugte Variante der Erfindung besteht somit darin, entsprechend einem durch ein zu verkapselndes Display vorgegebenen Layout eine Vielzahl von Aussparungen in einem Glasnutzen in einem einzigen Arbeitsgang herzustellen und die Vereinzelung erst nach dem Verkapseln durchzuführen. Ein zusätzlicher Vorteil besteht darin, daß sich nahezu jede gewünschte Form durch einfaches photolithographisches Strukturieren herstellen läßt.

Von Vorteil ist weiterhin, daß bei den durch ein Strahlverfahren hergestellten Glaskappen die innere Oberfläche, d.h. die Kappeninnenseite, aufgerauht ist. Werden nämlich zusätzlich Gettermaterialien eingesetzt, um Feuchtigkeit oder Sauerstoff zu binden, so lassen sich auf der rauhen Oberfläche anorganische Materialien durch Verdampfen langfristig stabil abscheiden. Auch können Gettersubstanzen, dispergiert in einem organischen Klebstoff, langfristig stabil mit der rauhen Kappeninnenseite verklebt werden.



Die aneinanderzufügenden Glasteile, d.h. Glaskappe und Glas-
substrat, weisen an den gemeinsamen Stellen normalerweise
eine relativ glatte Oberfläche auf. Dies kann bei der Ver-
klebung unter Umständen zu Benetzungs- und damit Haftungs-
5 problemen führen, woraus eine Klebefuge mit verringerter
Dichtigkeit resultieren könnte.

Die Erfindung sieht daher vorzugsweise vor, daß die Glaskappe
am Rand, d.h. an den Stellen, die mit dem Glassubstrat ver-
10 klebt werden, eine gewisse Rauhigkeit aufweist. Dies wird
dadurch erreicht, daß diese Stellen oberflächlich aufgerauht
sind. Die Aufrauung, d.h. die Oberflächenbehandlung bzw.
-modifizierung des Randes der Glaskappe erfolgt dabei vor-
teilhaft in entsprechender Weise wie die Herstellung der
15 Glaskappe selbst, d.h. durch einen Materialabtrag mittels
eines Strahlverfahrens. Durch Einhalten bestimmter Verfah-
rensparameter (Strahlmittel, Strahldruck, Strahlabstand und
Strahlzeit) ist es dabei möglich, daß nur ein sehr geringer
Materialabtrag erfolgt.

20 Durch die Oberflächenbehandlung wird eine Rauhigkeit des
Glases erreicht, die zu einer Vergrößerung der Oberfläche und
damit zu einer verbesserten Benetzung und Haftung des Kleb-
stoffes beim Fügeprozeß führt; die Rauhigkeit der Glasober-
25 fläche ist dabei in einem weiten Bereich einstellbar. Durch
die Oberflächenbehandlung werden außerdem alle am Glas adsor-
bierten Verunreinigungen, die beispielsweise von der Glasher-
stellung herrühren und die Dichtigkeit der Klebefuge beein-
trächtigen könnten, von der Glasoberfläche entfernt. Damit
30 entfallen aufwendige Reinigungsschritte vor dem Fügen der
Glasteile. Wegen des verbesserten Benetzungsverhaltens ergibt
sich darüber hinaus keine Begrenzung bei der Wahl des Kleb-
stoffes.

35 Vorteilhaft ist die Glaskappe mittels eines organischen Kleb-
stoffes mit dem Glassubstrat verklebt. Dazu dient vorzugs-
weise ein Epoxidharz.

Besonders vorteilhaft dient als Klebstoff ein UV-härtbarer Klebstoff. Die Verwendung eines derartigen Klebstoffes ist für die Verkapselung von OLEDs von Vorteil, weil die Härtung des Klebstoffes einerseits ökonomisch schnell und andererseits materialschonend bei niedrigen Temperaturen erfolgt.

Ein besonderer Vorteil von Glaskappen, die mittels eines Strahlverfahrens hergestellt wurden, ergibt sich bei der Verwendung eines UV-härtbaren Klebstoffes. Beim Strahlverfahren kann nämlich - durch die Wahl der Strahlbedingungen - die Rauigkeit der Kappeninnenseite so gestaltet werden, daß einfallende Lichtstrahlen weitestgehend diffus reflektiert werden. Dadurch wird die Energie der Lichtstrahlen soweit vermindert, daß eine Strahlenschädigung der lichtemittierenden Diode, d.h. der auf dem Glassubstrat befindlichen Materialien, vollständig vermieden werden kann. Dies ist insbesondere dann von Vorteil, wenn die Glaskappe mittels eines UV-härtbaren Klebstoffes verklebt wird, weil dabei eine Abschattung strahlungsempfindlicher Bereiche nicht erforderlich ist.

Bei den Bauelementen nach der Erfindung erfolgt die Herstellung der organischen lichtemittierenden Dioden, die durch eine Glaskappe verkapselt werden sollen, nach bekannten Verfahren. Dies sind beispielsweise Spin-coating, wenn Polymerlösungen verarbeitet werden, oder Aufdampfen, wenn Monomere verarbeitet werden. Als Substrate werden ITO-beschichtete Gläser (ITO = Indium Tin Oxide) verwendet, wobei das ITO auch strukturiert sein kann. ITO ist transparent und wird wegen seiner elektrischen Eigenschaften als Anode verwendet. Falls erforderlich, werden Hilfsschichten, wie Loch- und elektronenleitende Schichten, verwendet. Als Kathode werden Metalle, wie Calcium, aufgedampft. Die zu verbindenden Teile bestehen aus einem Glassubstrat, auf dem sich die organische lichtemittierende Diode befindet, und einer Glaskappe. Die zu fügenden Teile werden in einer inerten, d.h. insbesondere sauerstoff- und wasserfreien Atmosphäre zueinander positio-

niert und miteinander verklebt, beispielsweise mit einem organischen Kleber.

5 Anhand von Ausführungsbeispielen und einer Figur soll die Erfindung noch näher erläutert werden.

Die Figur zeigt - nicht maßstäblich - einen schematischen Querschnitt durch ein Bauelement 10 nach der Erfindung. Dabei ist auf einem Glassubstrat 11 eine organische lichtemittierende Diode (OLED) 12 angeordnet. Die OLED 12 ist durch eine Glaskappe 13 abgedeckt, welche am Rand 14 mit dem Glassubstrat 11 verklebt ist. Die OLED 12 weist folgende Bestandteile auf: eine transparente Elektrode 15, beispielsweise aus ITO, ein organisches Lochtransportmaterial 16, beispielsweise aus einem leitenden Polymer, ein organisches elektrolumineszierendes Material 17, beispielsweise ein lichtemittierendes Polymer, und eine Metallelektrode 18, die beispielsweise aus Calcium 19 und Silber 20 zusammengesetzt ist. Das organische elektrolumineszierende Material 17, d.h. der Emitter (Chromophor), dient dabei gleichzeitig als Elektronentransportmaterial. Die beiden Funktionen können aber auch getrennt sein, wobei dann das Elektronentransportmaterial zwischen Metallelektrode und Emitter angeordnet ist.

25 Beispiel 1

Herstellung von organischen lichtemittierenden Dioden

Zur Herstellung von lichtemittierenden Dioden auf Basis von Polymeren werden auf einem ITO-beschichteten Glassubstrat (Kantenlänge: 4 cm x 4 cm, Dicke: 1,1 mm) mittels Photolithographie zwei zueinander parallele, 2 mm breite ITO-Streifen im Abstand von 1 cm erzeugt. Belichtete Stellen werden in einem alkalischen Medium nicht abgelöst; dadurch wird das ITO geschützt. Freiliegendes ITO wird mit konz. HBr abgelöst. Auf das ITO-strukturierte Glassubstrat wird mittels Spin-coating aus wässriger Lösung eine 70 nm dicke Schicht aus



handelsüblichem Polyethylendioxythiophen (PEDOT) aufgebracht. Diese Schicht wird durch einen Temperprozeß getrocknet. Anschließend wird darauf - ebenfalls durch Spin-coating - aus Xylol eine Emitterschicht, bestehend aus einem handelsüblichen Polyfluorenderivat, mit einer Dicke von 100 nm aufgebracht. Diese Schicht wird bei einem Druck von 10^{-6} mbar getrocknet. Beim gleichen Druck werden durch eine Schattenmaske zwei je 2 mm breite Calciumstreifen im Abstand von 1 cm als Kathoden aufgedampft. Diese Metallstreifen sind rechtwinklig zu den auf dem Glassubstrat befindlichen ITO-Strukturen angeordnet. Die Flächen der sich kreuzenden Anoden- und Kathodenbahnen, zwischen denen sich die Polymeren befinden, stellen die aktive Fläche der Leuchtdiode dar. Auf die Calciumstreifen werden - ebenfalls durch eine Schattenmaske - Silberstreifen mit einer Dicke von 150 nm aufgedampft. An den zu verklebenden Stellen wird allerdings kein Metall aufgedampft, an diesen Stellen werden vielmehr die organischen Schichten manuell abgezogen.

Zu Testzwecken werden vier von auf diese Weise hergestellte Dioden mit einer Glaskappe verkapselt. Die Außenmaße der Kappe betragen 24 mm x 24 mm (Dicke: 1,1 mm), der Kleberand beträgt 1 mm und die Tiefe der Aussparung 500 µm. Die zu fügenden Teile werden in einer sauerstoff- und wasserfreien Atmosphäre zueinander positioniert und miteinander verklebt, und zwar mit einem organischen Klebstoff. Wird bei diesem Bauelement an die ITO- bzw. Ca/Ag-Ausleitungen am Rande des Glassubstrats beispielsweise eine Spannung von 5 V angelegt, so leuchtet die verkapselte Diode grün.

30

Beispiel 2

Herstellung von Glaskappen mit glattem Kleberand

35 Zur Herstellung der Glaskappen werden 1,1 mm dicke planparallele Glasplatten verwendet. Die Glasplatten werden in einem Ultraschallbad mit Aceton 10 min gereinigt und anschließend

- 5 min in einem Sauerstoffplasma. Dann erfolgt eine Photostrukturierung der Glasoberfläche. Hierzu wird eine photostrukturierbare Folie (Dicke 75 μm), beispielsweise auf Acrylharzbasis, bei 100°C unter moderatem Druck auflaminiert.
- 5 Anstelle der Folie kann alternativ aber auch ein Photolack - mittels Spin-coating oder Siebdruck - aufgebracht werden. Nachfolgend wird durch eine Cr-Belichtungsmaske mit UV-Licht belichtet. Die Belichtungszeit wird so gewählt, daß das Material noch weich bleibt. Eine vollständig ausgehärtete Folie
- 10 wäre nämlich spröde und würde beim Strahlprozeß geschädigt. Die Entwicklung erfolgt im vorliegenden Fall alkalisch, beispielsweise mit wäßriger 1 %iger Na_2CO_3 -Lösung. Hierbei werden die nicht-belichteten Stellen, an denen ein Strahlspanen erfolgen soll, abgelöst. Diese Stellen entsprechen den zu
- 15 erzeugenden Aussparungen. Die Glasplatten sind nun dort, wo beim Strahlspanprozeß kein Materialabtrag stattfinden soll, d.h. an den Rändern, durch eine elastische Kunststoffmaske geschützt.
- 20 Beim Strahlspanen wird als Strahlmittel vorzugsweise ein handelsüblicher Edelkorund mit einer mittleren Korngröße von 30 μm verwendet. Bei einem Strahldruck von vorzugsweise 5 bar, einer Injektorstrahldüse (als Strahldüse), einem Abstand Düse/Werkstück von 80 mm und einer angepaßten Relativ-
- 25 bewegung zwischen Werkstück und Strahldüse können bei einer Strahlzeit vom 10 min Aussparungen mit einer Tiefe von 500 nm erhalten werden. Nach der Erzeugung der Aussparungen wird die die Kappenränder schützende Photolackfolie bzw. der Photolack entfernt. Dies geschieht mit einem alkalischen Medium, beispielsweise mit wäßriger Na_2CO_3 -Lösung. Danach erfolgt, falls
- 30 erforderlich, die Vereinzelung der Glaskappen, beispielsweise durch Sägen oder Brechen.

Beispiel 3

Herstellung von Glaskappen mit rauhem Kleberand

5 Bei der Herstellung von Glaskappen mit aufgerauhtem Kleberand wird zunächst entsprechend Beispiel 2 vorgegangen. Der entscheidende Unterschied besteht darin, daß nach der Erzeugung der Aussparung die die Kappenränder schützende Lackschicht in einem alkalischen Medium abgelöst wird. Die dann freiliegen-
10 den Ränder der Kappe werden einem Strahlspanverfahren unterworfen. Dies erfolgt durch flächiges Überstrahlen mit geringem Druck, vorzugsweise 3 bar. Als Strahlmittel wird Korund mit einer mittleren Korngröße von 9 µm verwendet. Bei einer Strahlzeit von 30 s werden Glaskappenränder mit einer Rau-
15 heit der von etwa 30 rms hergestellt. Die gewünschte Rau- heit kann durch die Korngröße und die Strahlzeit in weiten Grenzen eingestellt werden.

Auch hierbei erfolgt, falls erforderlich, im letzten Schritt
20 die Vereinzelung der Glaskappen nach bekannten Verfahren, wie Sägen oder Brechen.

Beispiel 4

25 Herstellung von Bauelementen

Die bei der Herstellung der Bauelemente zu fügenden Teile, d.h. das Glassubstrat mit den darauf befindlichen organischen lichtemittierenden Dioden und die Glaskappen, werden in einer
30 insbesondere sauerstoff- und wasserfreien Atmosphäre zueinander positioniert und miteinander verklebt. Die Verklebung erfolgt mit einem organischen Klebstoff, vorzugsweise mit einem UV-härtbaren Epoxidharz. Die Applikation des Klebstoffes erfolgt durch Kapillarverguß oder automatisch mittels
35 eines Dispensers, die Härtung mit UV-Licht in einem geeigneten Wellenlängenbereich. In dieser Weise kann sowohl bei

Glaskappen mit glattem als auch bei Glaskappen mit rauhem Kleberand vorgegangen werden.

Beispiel 5

5

Test der Bauelemente mit gekapselten organischen licht-emittierenden Dioden

10 Entsprechend Beispiel 4 hergestellte Bauelemente werden in einer Klimakammer bei einer Temperatur von 85°C und einer relativen Feuchte von 85 % gelagert. Unter entsprechenden Bedingungen werden Bauelemente gelagert, bei denen die Dioden mit einer Glaskappe gekapselt sind, die durch mechanisches Fräsen hergestellt wurde. Während bei diesen Bauelementen die
15 Dioden bereits nach 48 h ausfielen, konnte bei den Bauelementen nach der Erfindung die Standzeit der Dioden auf über 160 h verbessert werden, und zwar sowohl bei Glaskappen mit glattem als auch mit rauhem Kleberand.

20

Patentansprüche

1. Bauelemente, g e k e n n z e i c h n e t durch
 - ein Glassubstrat (11)
 - 5 • eine auf dem Glassubstrat (11) angeordnete organische lichtemittierende Diode (12) und
 - eine über der organischen lichtemittierenden Diode (12) angeordnete und am Rand (14) mit dem Glassubstrat (11) verklebte Glaskappe (13), die aus einer Glasplatte durch
 - 10 dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines Strahlverfahrens hergestellt ist.
2. Bauelemente nach Anspruch 1, d a d u r c h g e -
k e n n z e i c h n e t , daß der Rand der Glaskappe
- 15 oberflächlich aufgeraut ist.
3. Bauelemente nach Anspruch 1 oder 2, d a d u r c h
g e k e n n z e i c h n e t , daß die Glaskappe mittels
eines organischen Klebstoffes mit dem Glassubstrat verklebt
- 20 ist.
4. Bauelemente nach Anspruch 3, d a d u r c h g e -
k e n n z e i c h n e t , daß der Klebstoff UV-härtbar ist.
- 25 5. Bauelemente nach Anspruch 3 oder 4, d a d u r c h
g e k e n n z e i c h n e t , daß der Klebstoff ein Epoxidharz ist.
6. Verfahren zur Herstellung von Bauelementen nach einem oder
- 30 mehreren der Ansprüche 1 bis 5, d a d u r c h g e -
k e n n z e i c h n e t , daß in einer Glasplatte durch
dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines Strahlverfahrens eine Vielzahl von Aussparungen erzeugt wird, daß unter
Verwendung dieser Glasplatte eine entsprechende Anzahl von
- 35 auf einem Substrat entsprechend angeordneten organischen
lichtemittierenden Dioden verkapselt wird, und daß nachfol-

gend die dabei erhaltenen Bauelemente zumindest teilweise
vereinzelt werden.

Zusammenfassung

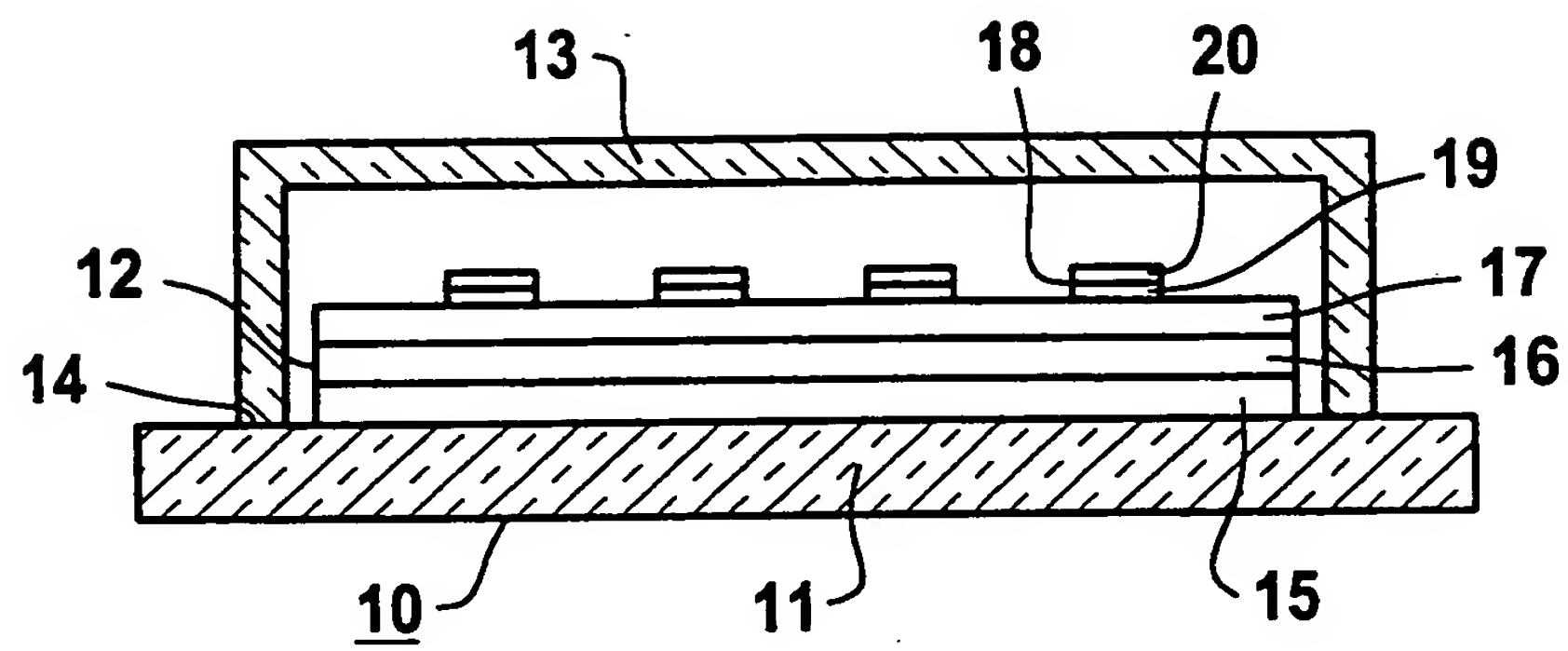
Bauelemente und deren Herstellung

- 5 Die Bauelemente nach der Erfindung weisen folgende Komponenten auf:
- ein Glassubstrat (11)
 - eine auf dem Glassubstrat (11) angeordnete organische lichtemittierende Diode (12) und
 - 10 • eine über der organischen lichtemittierenden Diode (12) angeordnete Glaskappe (13), die am Rand (14) mit dem Glassubstrat (11) verklebt ist, wobei die Glaskappe aus einer Glasplatte durch dreidimensionalen Materialabtrag mittels eines Strahlverfahrens hergestellt ist.

15

FIG 1

1/1



JC13 Rec'd PCT/PTO 08 MAR 2002



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



(11) **EP 0 776 147 A1**

(12) **EUROPEAN PATENT APPLICATION**

(43) Date of publication:
28.05.1997 Bulletin 1997/22

(51) Int. Cl.⁶: **H05B 33/12, H05B 33/04**

(21) Application number: **96118582.4**

(22) Date of filing: **20.11.1996**

(84) Designated Contracting States:
DE FR GB

(30) Priority: **24.11.1995 JP 306143/95**

(71) Applicants:
• **PIONEER ELECTRONIC CORPORATION**
Meguro-ku Tokyo-to (JP)
• **Tohoku Pioneer Electronic Corporation**
Yonezawa-shi, Yamagata-ken (JP)

(72) Inventors:
• **Kawami, Shin**
c/o Pioneer Electronic Corp.
Saitama-ken (JP)

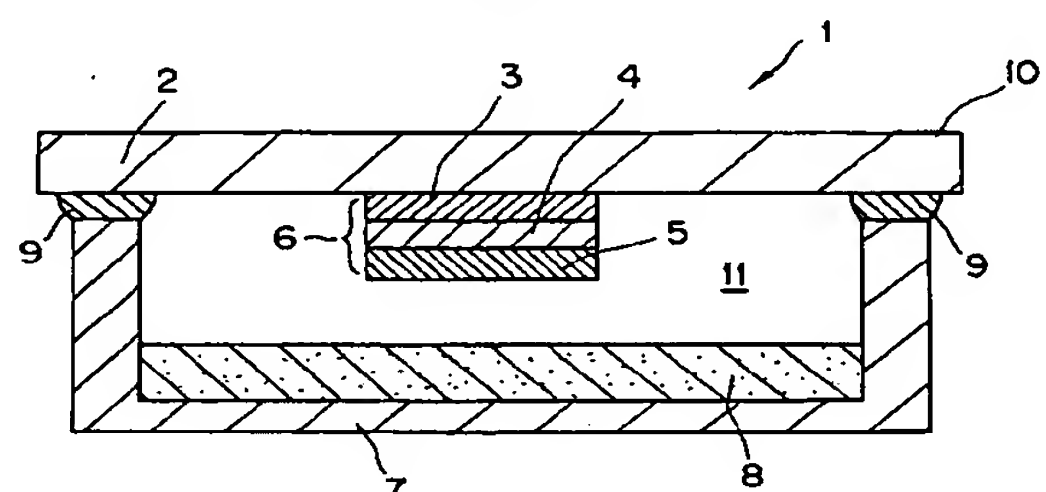
• **Nakada, Hitoshi**
c/o Pioneer Electronic Corp.
Saitama-ken (JP)
• **Naïto, Takemi**
c/o Tohoku Pioneer Electronic Corp.
Yonezawa-shi, Yamagata-ken (JP)

(74) Representative: **Böck, Bernhard, Dipl.-Ing.**
Jaeger, Böck & Köster,
Patentanwälte,
Egloffsteinstrasse 7
97072 Würzburg (DE)

(54) **Organic EL element**

(57) An organic EL element (1) is provided with: a lamination body (6, 6') having a pair of electrodes (3, 5) opposed to each other and an organic luminescent material layer (4), which comprises an organic compound and is interposed between the pair of electrodes, for emitting a light from the organic luminescent material layer by supplying electrons and holes to the organic luminescent material layer from the pair of electrodes; an airtight container (10) for airtightly containing the lamination body to isolate the lamination body from an external atmosphere thereof; and a drying substance (8) airtightly contained in the airtight container and spaced from the lamination body in an internal space (11) of the airtight container, for absorbing moisture in the internal space. The drying substance (8) comprises a solid compound which chemically absorbs the moisture and maintains its solid state even after absorbing the moisture.

FIG. 1



EP 0 776 147 A1

Description

BACKGROUND OF THE INVENTION

1. Field of the Invention

The present invention generally relates to an organic EL (Electro-Luminescence) element suitably used for a display device, a light emission element, etc. of apparatuses for various information industries, and more particularly to an organic EL element, which can maintain a stable light emission property for a long period of time.

2. Description of the Related Art

The EL element is constructed such that an organic luminescent material layer is interposed between a pair of electrodes opposed to each other. By injecting the electrons from one of the electrodes and injecting the holes from the other of the electrodes to the organic luminescent material layer, the electrons and the holes are combined in the organic luminescent material layer, so that the EL element emits the light. The EL element is superior in the visibility and the endurance against a physical shock, and also has a merit of the high variety in colors of emitted light from the organic material forming the organic luminescent material layer, so that it is suitably used for a display device and a light emission element of apparatuses for various information industries, for example.

On the other hand, the organic EL element has such a demerit that, after it has been driven for a certain period of time, the light emission properties such as a light emission intensity and a light emission uniformity are considerably degraded as compared with those at the initial state. One of the reasons for this degradation of the light emission properties is that the moisture, which has been absorbed on a surface of a constitutional part of the organic EL element, and the moisture, which has invaded into the organic EL element, invades through a defect etc. of the surface of a cathode into the lamination body, which has a pair of electrodes (i.e. the cathode and anode) and the organic luminescent material layer interposed therebetween, so that the detachment between the organic luminescent material layer and the cathode is caused. As a result, a so-called dark spot, i.e. a spot of the light emission portion, which does not emit the light because the electricity is not supplied thereto, is generated.

Therefore, it is necessary to decrease the humidity in the internal of the organic EL element so as to prevent the generation of the dark spots.

In order to prevent the internal of the organic EL element from becoming a high humidity condition, there is proposed one method, which has such a construction that a sealing layer and a protection layer including a drying agent are disposed at the external of the lamination body of the cathode, the organic luminescent mate-

rial layer and the anode (Japanese Patent Application Laying Open NO. Hei. 7-169567). There is also proposed another method, which has such a construction that the lamination body of the pair of electrodes opposed to each other and the organic luminescent material layer interposed therebetween is accommodated in an airtight case, and that drying means composed of phosphorus pentoxide (P_2O_5) is accommodated in the airtight case and is spaced from the lamination body, so that the lamination body and the drying means are midair-sealed in the airtight case (Japanese Patent Application Laying Open NO. Hei. 3-261091).

However, the above mentioned organic EL element, which has the construction that the sealing layer and the protection layer including the drying agent are directly laminated on the external of the lamination body (Japanese Patent Application Laying Open NO. Hei. 7-169567), a leak current and a cross-talk can be easily generated because of the formation of the protection layer, so that it considerably degrades the light emission property.

On the other hand, the above mentioned organic EL element, which has such a construction that the lamination body and the drying means composed of P_2O_5 are accommodated in the airtight case (Japanese Patent Application Laying Open NO. Hei. 3-261091), although it does not have such a problem that the leak current or the cross-talk is easily generated, P_2O_5 absorbs the moisture in the atmosphere and is dissolved into the absorbed water (deliquescence), so that phosphoric acid is generated, which badly influences the lamination body. Further, since the method of enclosing the drying means composed of P_2O_5 into the airtight case is extremely limited, this organic EL element is not practical.

SUMMARY OF THE INVENTION

It is therefore an object of the present invention to provide an organic EL element, in which the generation of the leak current or the cross-talk is restrained, which has the drying means harmless for the organic EL element and is easily handled at the time of enclosing the drying means, and which can maintain a stable light emission property for a long period of time.

The above object of the present invention can be achieved by an organic EL element provided with: a lamination body having a pair of electrodes opposed to each other and an organic luminescent material layer, which comprises an organic compound and is interposed between the pair of electrodes, for emitting a light from the organic luminescent material layer by supplying electrons and holes to the organic luminescent material layer from the pair of electrodes; an airtight container for airtightly containing the lamination body to isolate the lamination body from an external atmosphere thereof; and a drying substance airtightly contained in the airtight container and spaced from the lamination body in an internal space of the airtight con-

tainer, for absorbing moisture in the internal space. The drying substance comprises a solid compound which chemically absorbs the moisture and maintains its solid state even after absorbing the moisture.

According to the present invention, the solid compound, which chemically absorbs the moisture and maintains its solid state even after absorbing the moisture, is used for the drying substance, in the construction of the organic EL element in which the drying substance and the lamination body are airtightly contained in the airtight container such that the drying substance is spaced from the lamination body in the internal space.

Thus, since the moisture is chemically absorbed, the solid compound of the drying substance does not discharge the moisture, which has been once absorbed, to the internal space of the airtight container even at a high temperature. As a result, the growth of the dark spot of the organic EL element can be sufficiently restrained. On the contrary to this, if the solid compound, which physically absorbs the moisture such as silica gel, is used to absorb the moisture, the drying substance certainly discharges the moisture, which has been once absorbed, to the internal space of the airtight container, at a high temperature. As a result, the growth of the dark spot of the organic EL element cannot be sufficiently restrained.

Further, since the solid compound of the drying substance maintains its solid state even after absorbing the moisture, the drying substance does not badly influence the lamination body even after absorbing the moisture. Namely, the solid compound certainly prevents the high humidity condition from occurring in the organic EL element so as to prevent the generation of the leak current and the cross-talk, and does not cause the leak current or the cross-talk even after absorbing the moisture. On the contrary to this, if the drying substance is composed of a compound which liquefies after absorbing the moisture, although it works in its initial state, it will badly influence the organic EL element after liquefying in the container.

Furthermore, since the solid compound is certainly in a solid state at the time of enclosing it into the airtight container, the handling at the time of enclosing the drying substance is rather easy, and various enclosing methods may be employed. On the contrary to this, if the drying substance is composed of a compound, which liquefies after absorbing the moisture, or a liquid compound from its original state, the handling at the time of enclosing the drying substance is rather difficult, and the enclosing method is quite limited in a practical sense.

Consequently, the generation and growth of the dark spots can be surely restrained after driving it for a certain period of time, and the stable light emission property can be maintained for a long period of time, according to the present invention.

In one aspect of the present invention, the lamination body further has an electron supplying layer and a

holes supplying layer laminated on the pair of electrodes for respectively supplying the electrons and the holes.

According to this aspect, the electron and the holes can be reliably supplied to the pair of electrodes, so that the light can be reliably emitted from the organic luminescent material layer.

In another aspect of the present invention, the airtight container is provided with: a sealing case, in which the drying substance is disposed; a transparent substrate, on which the lamination body is disposed and which covers the sealing case; and a sealing agent for airtightly bonding the transparent substrate to the sealing case.

According to this aspect, the reliable airtight condition of the airtight container can be obtained by use of a rather simple construction, and the production procedure of the organic EL element can be simplified.

In another aspect of the present invention, the internal space of the airtight container is filled with inert gas.

According to this aspect, the drying substance, which is spaced from the lamination body in the internal space of the airtight container, can be certainly isolated from the lamination body by the existence of the internal space filled with the inert gas.

In the present invention, the solid compound of the drying substance may comprise an alkaline metal oxide compound, an alkaline earth metal oxide compound, sulfate, metal halide, perchlorate or an organic substance. In this manner, various kinds of solid compounds can be employed in the present invention, as long as they have the property to chemically absorb the moisture and maintain its solid state even after absorbing the moisture.

The nature, utility, and further features of this invention will be more clearly apparent from the following detailed description with respect to preferred embodiments of the invention when read in conjunction with the accompanying drawings briefly described below.

BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS

FIG. 1 is a cross-sectional view of an organic EL element as an embodiment of the present invention; and

FIG. 2 is a partial cross-sectional view of a modified lamination body of the organic EL element of FIG. 1.

DETAILED DESCRIPTION OF THE PREFERRED EMBODIMENTS

Referring to the accompanying drawings, embodiments of the present invention will be now explained.

In FIG. 1 an organic EL element 1 as an embodiment of the present invention is provided with: a glass substrate 2; a lamination body 6 comprising an ITO electrode (i.e. $\text{In}_2\text{O}_3\text{:Sn}$ film electrode) 3, an organic luminescent material layer 4 and a cathode 5; a glass

sealing case 7; a drying substance 8; and a sealing agent 9.

Although the lamination body 6 comprises three laminated layers i.e., the ITO electrode 3, the organic luminescent material layer 4 and the cathode 5 in FIG. 1, the lamination body 6 may further comprise a hole supplying layer 21 and an electron supplying layer 22 in addition to those three layers, and that those layers may comprise multiple layers, to be a lamination body 6' having a construction as shown in FIG. 2.

In FIG. 1, more concretely, the ITO electrode 3, the organic luminescent material layer 4 and the cathode 5 are laminated in this order on the glass substrate 2 to form the lamination body 6. The drying substance 8 is disposed in the glass sealing case 7 such that the drying substance 8 is spaced from the lamination body 6. The lamination body 6 and the drying substance 8 are enclosed in an internal space 11 of an airtight container 10 composed of the glass substrate 2 and the glass sealing case 7, which are airtightly bonded to each other by the sealing agent 9.

The internal space 11 of the airtight container 10 is filled with dried inert gas to isolate the drying substance 8 from the lamination body 6. The drying substance 8 comprises a solid compound, which chemically absorbs moisture and maintains its solid state even after absorbing the moisture.

As such a solid compound of the drying substance 8, as long as it chemically absorbs moisture and maintains its solid state even after absorbing the moisture, any solid compound can be used here.

For example, an alkaline metal oxide compound, an alkaline earth metal oxide compound, sulfate (sulphate), metal halide (halogenide), perchlorate and an organic substance are available as such a solid compound of the drying substance 8.

As the alkaline metal oxide compound, sodium oxide (Na_2O) and potassium oxide (K_2O) are available, for example. As the alkaline earth metal oxide compound, calcium oxide (CaO), barium oxide (BaO) and magnesium oxide (MgO) are available, for example.

As the sulfate, lithium sulfate (Li_2SO_4), sodium sulfate (Na_2SO_4), calcium sulfate (CaSO_4), magnesium sulfate (MgSO_4), cobalt sulfate (CoSO_4), gallium sulfate ($\text{Ga}_2(\text{SO}_4)_3$), titanium sulfate ($\text{Ti}(\text{SO}_4)_2$) and nickel sulfate (NiSO_4) are available, for example. The anhydrides of these sulfates are preferably employed here.

As the metal halide, calcium chloride (CaCl_2), magnesium chloride (MgCl_2), strontium chloride (SrCl_2), yttrium chloride (YCl_3), copper chloride (CuCl_2), cesium fluoride (CsF), tantalum fluoride (TaF_5), niobium fluoride (NbF_5), calcium bromide (CaBr_2), cesium bromide (CsBr_3), selenium bromide (SeBr_4), vanadium bromide (VBr_2), magnesium bromide (MgBr_2), barium iodide (BaI_2) and magnesium iodide (MgI_2) are available, for example. The anhydrides of these halides are preferably employed here.

As the perchlorate, barium perchlorate ($\text{Ba}(\text{ClO}_4)_2$) and magnesium perchlorate ($\text{Mg}(\text{ClO}_4)_2$) are available,

for example. The anhydrides of these perchlorates are preferably employed here.

Further, other than the above described inorganic compounds, the organic substance is also available for the drying substance 8. However, in case of the organic substance, the property is still required to chemically absorb moisture and maintain its solid state even after absorbing the moisture.

As a method of enclosing the drying substance 8 in the airtight container 10, a method of consolidating the above explained chemical compound to be a solid compound formed in a predetermined shape and setting this solid compound in the glass sealing case 7, a method of packing the above explained chemical compound into an air-permeable bag and fixing the bag in the glass sealing case 7, a method of preparing a partition in the glass sealing case 7 and enclosing the above explained chemical compound into this partition, and a method of forming a film of the above explained chemical compound, by a vacuum-vapor deposition, a sputtering, a spinner-coating and so on, on the internal surface of the glass sealing case 7, are available, for example.

As explained above, since the drying substance 8, which has the property to chemically absorb moisture and maintain its solid state even after absorbing the moisture, is used for the organic EL element 1, handling at the time of enclosing the drying substance 8 into it is rather easy, and a more simple or functional enclosing method can be employed.

Concrete examples of the present embodiment will be explained hereinbelow.

1. First Example

As the drying substance 8, the barium oxide (BaO) is used, and the organic EL element 1 having the structure shown in FIG. 1 is constructed as a first example. The drying substance 8 is enclosed in the glass sealing case 7 by fixing the drying substance 8 on the internal surface of the glass sealing case 7 by use of a bonding agent.

Right after enclosing the drying substance 8, a magnified photograph of a light emission portion of the organic EL element 1 is taken by a magnification of 50 times.

Nextly, after keeping this organic EL element 1 at a temperature of 85 °C for 500 hours, the magnified photograph of the light emission portion of the organic EL element 1 is taken in the same manner as right after enclosing.

By observing and comparing those two magnified photographs, the growth of dark spots is hardly observed.

2. Second Example

As the drying substance 8, in place of the barium oxide (BaO) in the first example, the calcium oxide (CaO) is used. Other than that, the organic EL element

1 is constructed and the magnified photographs (right after enclosing and after keeping it at the temperature of 85 °C for 500 hours) are taken in the same manner as the first example.

As a result, the growth of dark spots is hardly observed.

3. Third Example

As the drying substance 8, in place of the barium oxide (BaO) in the first example, the calcium sulfate (CaSO₄) is used. Other than that, the organic EL element 1 is constructed and the magnified photographs (right after enclosing and after keeping it at the temperature of 85 °C for 500 hours) are taken in the same manner as the first example.

As a result, the growth of dark spots is hardly observed.

4. Fourth Example

As the drying substance 8, in place of the barium oxide (BaO) in the first example, the calcium chloride (CaCl₂) is used. Other than that, the organic EL element 1 is constructed and the magnified photographs (right after enclosing and after keeping it at the temperature of 85 °C for 500 hours) are taken in the same manner as the first example.

As a result, the growth of dark spots is hardly observed.

5. Comparison Example

As the drying substance 8, in place of the barium oxide (BaO) in the first example, the silica gel is used. Other than that, the organic EL element 1 is constructed and the magnified photographs (right after enclosing and after keeping it at the temperature of 85 °C for 500 hours) are taken in the same manner as the first example.

As a result, it is observed that the growth of dark spots is remarkable.

As described above in detail, according to the present embodiment, the drying substance 8 has the property to chemically absorb moisture and maintain its solid state even after absorbing the moisture, and since this drying substance 8 is enclosed in the airtight container 10 in such a manner that the drying substance 8 is isolated from the lamination body 6, which comprises the pair of electrodes opposed to each other and the organic luminescent material layer interposed therebetween, by the internal space 11 filled with the inert gas. Thus, the drying substance 8 after absorbing the moisture dose not badly influence the organic EL element 1, and the handling at the time of enclosing the drying substance 8 is rather easy. Further, since the generation of the leak current and the cross-talk is certainly restrained, the stable light emission property can be maintained for a long period of time.

The invention may be embodied in other specific forms without departing from the spirit or essential characteristics thereof. The present embodiments are therefore to be considered in all respects as illustrative and not restrictive, the scope of the invention being indicated by the appended claims rather than by the foregoing description and all changes which come within the meaning and range of equivalency of the claims are therefore intended to be embraced therein.

Claims

1. An organic EL element (1) comprising a lamination body (6, 6') comprising a pair of electrodes (3, 5) opposed to each other and an organic luminescent material layer (4), which comprises an organic compound and is interposed between said pair of electrodes, for emitting a light from said organic luminescent material layer by supplying electrons and holes to said organic luminescent material layer from said pair of electrodes, characterized in that said organic EL element (1) further comprises:
 - an airtight container (10) for airtightly containing said lamination body (6, 6') to isolate said lamination body from an external atmosphere thereof; and
 - a drying substance (8) airtightly contained in said airtight container and spaced from said lamination body in an internal space (11) of said airtight container, for absorbing moisture in the internal space, said drying substance comprising a solid compound which chemically absorbs the moisture and maintains its solid state even after absorbing the moisture.
2. An organic EL element according to claim 1, characterized in that said lamination body (6') further comprises an electron supplying layer (22) and a holes supplying layer (21) laminated on said pair of electrodes (3, 5) for respectively supplying the electrons and the holes.
3. An organic EL element according to claim 1 or 2, characterized in that said airtight container (10) comprising: a sealing case (7), in which said drying substance (8) is disposed; a transparent substrate (2), on which said lamination body (6, 6') is disposed and which covers said sealing case; and a sealing agent (9) for airtightly bonding said transparent substrate to said sealing case.
4. An organic EL element according to any one of claims 1 to 3, characterized in that the internal space (11) of said airtight container (10) is filled with inert gas.
5. An organic EL element according to any one of claims 1 to 4, characterized in that the solid com-



pound of said drying substance (8) comprises an alkaline metal oxide compound.

6. An organic EL element according to any one of claims 1 to 4, characterized in that the solid compound of said drying substance (8) comprises an alkaline earth metal oxide compound. 5
7. An organic EL element according to any one of claims 1 to 4, characterized in that the solid compound of said drying substance (8) comprises sulfate. 10
8. An organic EL element according to any one of claims 1 to 4, characterized in that the solid compound of said drying substance (8) comprises metal halide. 15
9. An organic EL element according to any one of claims 1 to 4, characterized in that the solid compound of said drying substance (8) comprises perchlorate. 20
10. An organic EL element according to any one of claims 1 to 4, characterized in that the solid compound of said drying substance (8) comprises an organic substance. 25

30

35

40

45

50

55

FIG. 1

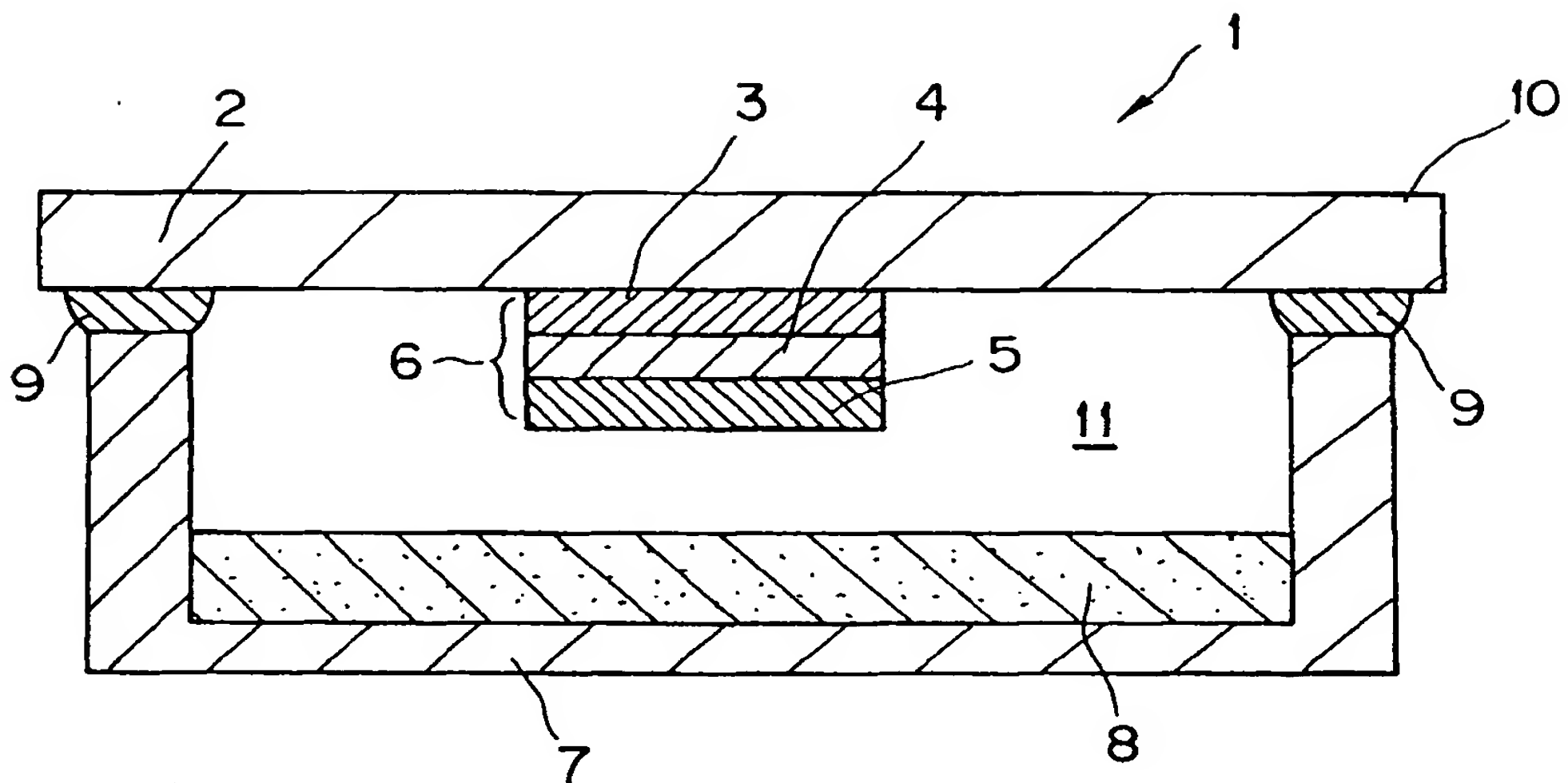
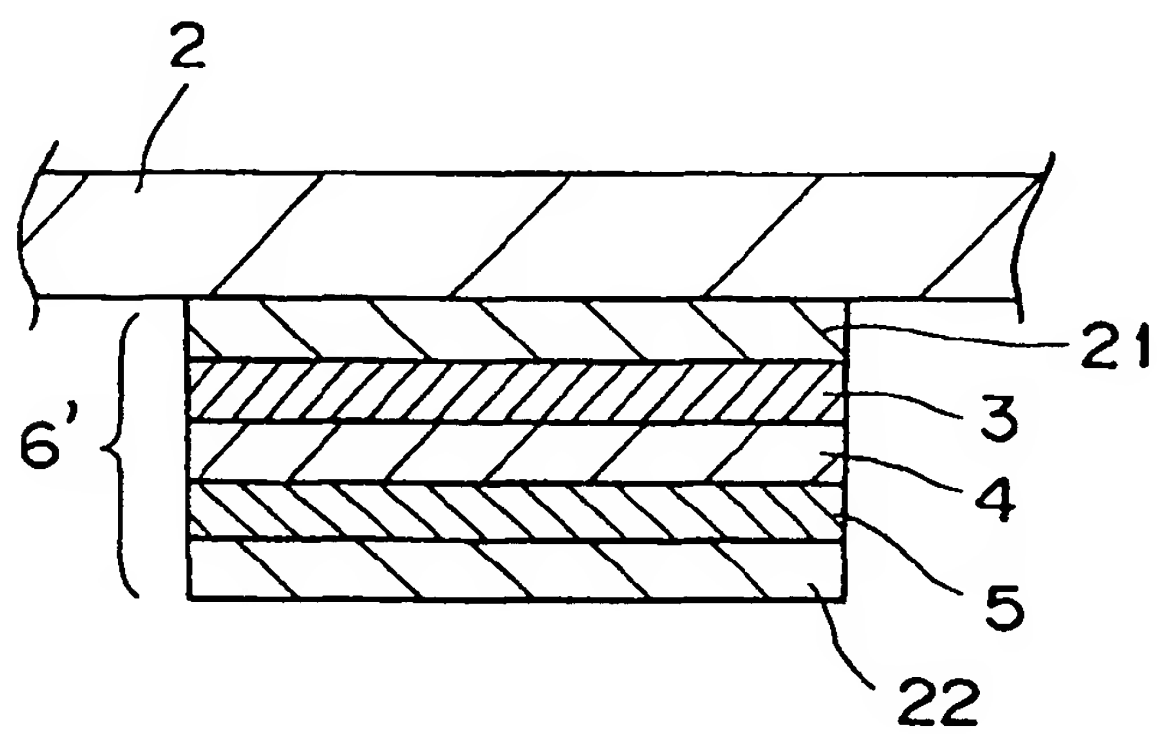


FIG. 2





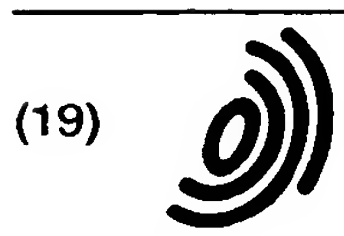
European Patent
Office

EUROPEAN SEARCH REPORT

Application Number
EP 96 11 8582

| DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT | | | |
|--|---|--|--|
| Category | Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages | Relevant to claim | CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.Cl.6) |
| A | EP 0 500 382 A (SHARP) * the whole document * | 1,3 | H05B33/12 H05B33/04 |
| A | EP 0 350 907 A (SHARP) * the whole document * | 1,3 | |
| A | US 5 189 405 A (T.YAMASHITA & AL) * the whole document * | 1,3 | |
| | | | TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.Cl.6) |
| | | | H05B |
| The present search report has been drawn up for all claims | | | |
| Place of search THE HAGUE | | Date of completion of the search 25 February 1997 | Examiner Drouot, M-C |
| <p>CATEGORY OF CITED DOCUMENTS</p> <p>X : particularly relevant if taken alone Y : particularly relevant if combined with another document of the same category A : technological background O : non-written disclosure P : intermediate document</p> <p>T : theory or principle underlying the invention E : earlier patent document, but published on, or after the filing date D : document cited in the application L : document cited for other reasons & : member of the same patent family, corresponding document</p> | | | |

EPO FORM 1503 03.92 (P04C01)



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



(11) **EP 0 781 075 A1**

(12)

EUROPEAN PATENT APPLICATION

published in accordance with Art. 158(3) EPC

(43) Date of publication:
25.06.1997 Bulletin 1997/26

(21) Application number: 95930701.8

(22) Date of filing: 05.09.1995

(51) Int. Cl.⁶: **H05B 33/04**

(86) International application number:
PCT/JP95/01764

(87) International publication number:
WO 96/08122 (14.03.1996 Gazette 1996/12)

(84) Designated Contracting States:
BE CH DE FR GB IT LI NL SE

(30) Priority: 08.09.1994 JP 214718/94
21.07.1995 JP 185968/95

(71) Applicant: IDEMITSU KOSAN COMPANY LIMITED
Tokyo 100 (JP)

(72) Inventors:

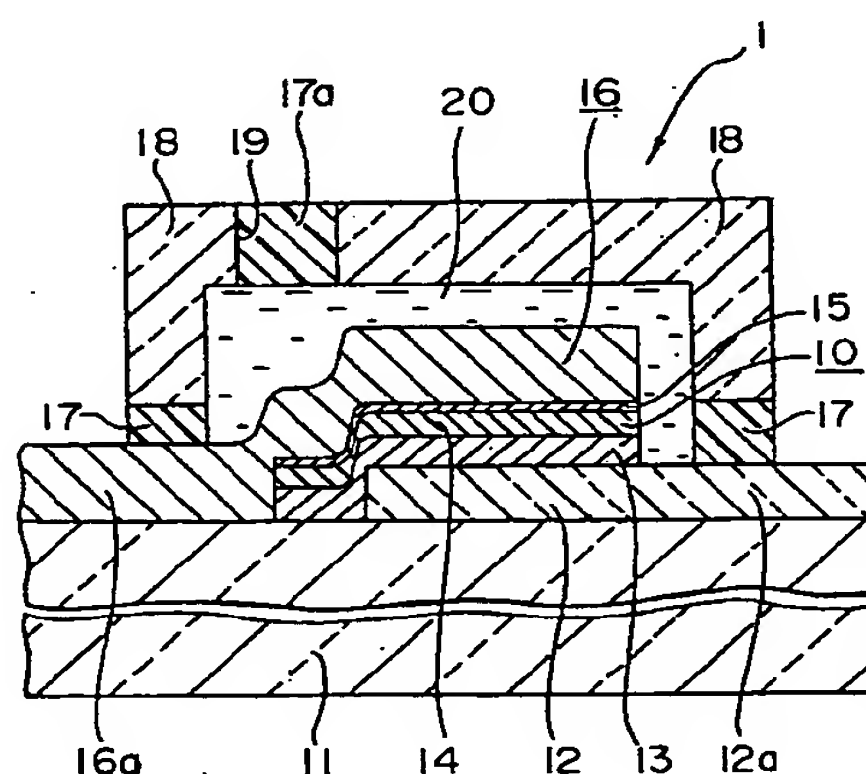
- FUJITA, Masato
Chiyoda-ku Tokyo 100 (JP)
- FUKUOKA, Kenichi
Sodegaura-shi Chiba-ken 299-02 (JP)

(74) Representative: Türk, Gille, Hrabal, Lelfert
Brucknerstrasse 20
40593 Düsseldorf (DE)

(54) **METHOD FOR SEALING ORGANIC EL ELEMENT AND ORGANIC EL ELEMENT**

(57) Being concerned with the method of encapsulation for an organic EL device, the present invention overcomes the difficulty of conventional methods in fully preventing the growth of dark spots in the organic EL device by providing an inert liquid layer having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less on the periphery of the organic EL device.

Fig. 1



EP 0 781 075 A1

Description

TECHNICAL FIELD

5 The present invention relates to a method of encapsulating an organic electroluminescence device ("electroluminescence" to be referred to as "EL" hereinafter) and an encapsulated organic electroluminescence device (to be referred to as "encapsulated EL device" hereinafter).

TECHNICAL BACKGROUND

10

An EL device has high visibility owing to self-emission of light, and has excellent impact resistance owing to a complete solid device. Due to these characteristics, there have been proposed a variety of inorganic EL devices for which inorganic compounds are adapted as a light-emitting material and a variety of organic EL devices for which organic compounds are adapted as a light-emitting material. Above all, developments of organic EL devices are actively under way for obtaining organic EL devices having higher performance, since the organic EL devices permit a decrease in drive voltage to a great extent as compared with inorganic EL devices.

15 In the basic constitution of an organic EL device, the organic EL device has a structure in which an anode, a light-emitting layer and a cathode are consecutively laminated, and the above organic EL device is formed on a substrate in many cases. The anode and the cathode may be reversed in position. In some cases, further, a hole-transporting layer is provided between the anode and the light-emitting layer, and an electron-injecting layer is provided between the cathode and the light-emitting layer, for improving the performance. The light-emitting layer is generally formed of one or a plurality of organic light-emitting materials, while it is sometimes formed of a mixture of an organic light-emitting material with a hole-transporting material and/or an electron-injecting material.

20 Further, in a pair of electrodes (anode and cathode) constituting the organic EL device, the electrode positioned on a surface through which light comes out is formed of a transparent or semi-transparent film for improving the light emission efficiency and due to a constitution as a surface light-emitting device. The other electrode (to be sometimes referred to as "opposite electrode" hereinafter) positioned opposite to the surface through which light comes out is formed of a specific metal thin film (thin film of metal, alloy or a mixture of metals)

25 The organic EL device having the above constitution is a current-driven light-emitting device, and it is required to apply a high electric current between the anode and the cathode for performing light emission. As a result, the device generates heat when the device is emitted, and when the device has oxygen or water around it, the oxygen and the water promote the oxidation of materials forming the device to degrade the device. In the typical degradation of the device by the oxidation and water, a dark spot occurs and grows. The dark spot refers to a fault point of light emission. As the oxidation of the materials forming the device proceeds with the driving of the organic EL device, the existing dark spot grows, and eventually, the dark spot spreads over the entirety of the light-emitting surface.

30 For preventing the above degradation, a variety of methods have been hitherto proposed. For example, for effectively removing heat which the device generates when the device is emitted, JP-A-4-363890 discloses a method in which an organic EL device is held in an inert liquid compound of liquid fluorinated carbon. As a method of removing water which is one of those which cause the degradation, JP-A-5-41281 discloses a method in which an organic EL device is held in an inert liquid compound prepared by incorporating a dehydrating agent such as synthetic zeolite into liquid fluorinated carbon (specifically, the same as the liquid fluorinated carbon disclosed in the above JP-A-4-363890). Further, JP-A-5-114486 discloses a method in which a heat-radiating layer encapsulating a fluorocarbon oil (specifically, included in the liquid fluorinated carbon disclosed in the above JP-A-4-363890) is formed on at least one of the anode and the cathode and heat generated at a time of driving the device is radiated through the heat-radiating layer to extend the light emission life of the device.

35 The degradation caused by water takes place in an inorganic EL device as well. As a method of preventing the degradation of the inorganic EL device, there is a method in which an inorganic EL device is encapsulated between a pair of glass substrates while providing a predetermined space and the space is charged with a protective liquid. U. S. Patent 4,446,399 discloses a method in which silicone oil or silicone grease is used as the above protective liquid. U. S. Patent 4,810,931 discloses a method in which a liquid obtained by degassing a perfluorinated inert liquid (specifically, the same as, or similar to, the liquid fluorinated carbon disclosed in the above JP-A-4-363890) under conditions of a liquid temperature of approximately 90 to 120°C and an ambient pressure of about 10 Torr is used as the above protective liquid.

40 However, the occurrence and the growth of a dark spot in an organic EL device cannot be fully prevented even if the above conventional methods on the organic EL device are relied upon. The reason therefor is assumed to be as follows.

45 For preventing the occurrence and the growth of the dark spot, it is one of useful means to utilize liquid fluorinated carbon for removing the heat which the organic EL device generates when the device is emitted or to use a dehydrating agent for removing water which infiltrates the organic EL device during or after the organic EL device is encapsulated.

However, studies by the present inventors show that the liquid fluorinated carbon and the fluorocarbon oil greatly dissolve gases, and not water which externally infiltrates but oxygen dissolved in the liquid fluorinated carbon or the fluorocarbon oil has a great influence on the occurrence and the growth of the dark spot. For example, perfluoroamine (Fluorinert (trade name), supplied by Sumitomo-3M Co., Ltd.) contains dissolved air in a maximum amount of 22 milliliters per 100 milliliters thereof (dissolved oxygen concentration 63 ppm). It is therefore difficult to fully prevent the occurrence and the growth of the dark spot by the above-described conventional methods on the organic EL device.

On the other hand, when the method of using a silicone oil or silicone grease as a protective liquid, among the above conventional methods on an inorganic EL device, is applied to the organic EL device, there is caused a problem that the organic EL device is degraded or broken by the silicone oil or the silicone grease. Further, when the method of using, as a protective liquid, a perfluorinated inert liquid which is degassed under the above-specified conditions is applied, it is difficult to fully prevent the occurrence and the growth of the dark spot in the organic EL device.

It is an object of the present invention to provide a method of encapsulating an organic EL device, in which the growth of the dark spot in the organic EL device can be firmly prevented, and an encapsulated organic EL device in which the growth of a dark spot is well prevented.

DISCLOSURE OF THE INVENTION

The method of encapsulating an organic EL device in the present invention, which achieves the above object, has a characteristic feature in that an inert liquid layer having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less is provided on the periphery of an organic EL device formed by laminating an anode and a cathode through at least a light-emitting layer.

Further, the encapsulated organic EL device of the present invention, which achieves the above object, has a characteristic feature in that the encapsulated organic EL device has an organic EL device and an inert liquid layer which is provided on the periphery of the organic EL device and has a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less.

BRIEF DESCRIPTION OF DRAWINGS

Fig. 1 is a schematic cross sectional view of an encapsulated organic EL device obtained in Example 1.

Fig. 2 is a schematic cross sectional view of an encapsulated organic EL device obtained in Example 3.

PREFERRED EMBODIMENTS OF THE INVENTION

First, the method of encapsulating an organic EL device in the present invention will be explained. In this method, an inert liquid layer having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less is provided on the periphery of an organic EL device as described above. The reason for the limitation of the above dissolved oxygen concentration of the inert liquid layer to 1 ppm or less is that it is difficult to firmly prevent the growth of a dark spot when the dissolved oxygen concentration of the inert liquid layer exceeds 1 ppm. The lower the dissolved oxygen concentration is, the more desired it is. In a practical sense, however, the dissolved oxygen concentration is preferably in the range of from 0.01 to 1 ppm, particularly preferably 0.1 ppm or less.

The term "inert liquid" in the present invention refers to a chemically and physically stable liquid, and for example, it means a liquid which has stability and undergoes neither a chemical reaction nor dissolution when brought into contact with other substance. Specific examples of the inert liquid include liquid fluorinated carbons such as perfluoroalkanes, perfluoroamines and perfluoropolyethers. The liquid fluorinated carbons are particularly suitable inert liquids, since they have advantages that (1) they are excellent in electrical insulation (for example, Demnum S-20 shown in Table 1 to be described later shows a breakdown voltage of 72 kV when a sample has a thickness of 2.5 mm), that (2) they have the property of being dissolved in neither water nor oil, so that they substantially do not dissolve any layers forming an organic EL device, and that (3) they have low wettability to the surface of a metal and glass so that they substantially do not cause the peeling of an electrode by infiltrating a gap between a substrate surface and the electrode present directly thereon (electrode constituting an organic EL device) when the organic EL device is formed on a substrate.

The above liquid fluorinated carbons are commercially available. Since, however, the dissolved oxygen concentration of the inert liquid used in the present invention is limited to 1 ppm or less and since the commercially available liquid fluorinated carbons have a dissolved oxygen concentration of far greater than 1 ppm, they cannot be used in the method of the present invention as they are. When those inert liquids have a dissolved oxygen concentration of greater than 1 ppm, they are therefore used in the method of the present invention after the dissolved oxygen concentration thereof is decreased to 1 ppm or less by a ordinary temperature vacuum degassing method, a freeze vacuum degassing method or an inert gas replacement method. The method of decreasing the dissolved oxygen concentration is properly selected depending upon the kind of the inert liquid to be used.

For example, most of perfluoroalkanes and perfluoroamines have a vapor pressure of over 10^{-2} Torr at 25°C. When

attempts are made to carry out an *ordinary temperature vacuum* degassing method with regard to those having a vapor pressure of over 10^{-2} Torr at 25°C , the vacuum degree cannot be increased to the vapor pressure or less, and the evaporation thereof easily proceeds at room temperature, so that it is very difficult to decrease the dissolved oxygen concentration by the ordinary temperature vacuum degassing method. With regard to those having a vapor pressure of over 10^{-2} Torr at 25°C , it is therefore preferred to decrease the dissolved oxygen concentration by a freeze vacuum degassing method or an inert gas replacement method.

When the dissolved oxygen concentration is decreased by a freeze vacuum degassing method, for example, a series of operations including the step of freezing a degassing object (inert liquid whose dissolved oxygen concentration is to be decreased) to be degassed with liquid nitrogen, or the like, the step of vacuuming the degassing object in a frozen state at 10^{-2} Torr or less and the step of melting the degassing object in a frozen state after the vacuuming are carried out as many times as desired until the degassing object has a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less. When the degassing object is selected from Fluorinert FC-72, Fluorinert FC-84, Fluorinert FC-77 and Fluorinert FC-75 (all of these are trade names and included in perfluoroalkanes) supplied by Sumitomo-3M Co., Ltd. and Fluorinert FC-40, Fluorinert FC-43 and Fluorinert FC-70 (all of these are trade names and included in perfluoroamines) supplied by the same Company as above, a series of the above operations are repeated at least five times, whereby an intended material can be obtained. When the dissolved oxygen concentration is decreased by an inert gas replacement method, for example, 0.1 to 1 liter/minute, per 50 cc of a degassing object, of an inert gas (argon gas, nitrogen gas, helium gas, neon gas, or the like) is fed to the degassing object to cause a bubbling approximately for 4 to 8 hours until the dissolved oxygen concentration of the degassing object is 1 ppm or less. Of the above two methods, the free vacuum degassing method is preferred in that the dissolved oxygen concentration can be decreased within a relatively small period of time.

On the other hand, most of perfluoropolyethers have a vapor pressure of 10^{-2} Torr or less at 25°C . With regard to those having a vapor pressure of 10^{-2} Torr or less at 25°C , the dissolved oxygen concentration can be decreased by a ordinary temperature vacuum degassing method as well as by the vacuum freeze degassing method or the inert gas replacement method since they have a low vapor pressure at room temperature and show a small evaporation amount at room temperature.

When the dissolved oxygen concentration of an inert liquid having a vapor pressure of 10^{-2} Torr or less at 25°C is decreased by the ordinary temperature vacuum degassing method, for example, a degassing object held at 160°C or lower is subjected to vacuuming at 10^{-2} Torr or less until the dissolved oxygen concentration of the degassing object is 1 ppm or less. When the degassing object has a kinetic viscosity of 65 cSt or less at the time of degassing operation, dissolved oxygen can be relatively easily degassed. When the degassing object has a high kinetic viscosity at the time of degassing operation, oxygen and water are firmly stuck among molecules, and sufficient degassing is difficult. It is therefore preferred to decrease the kinetic viscosity of the degassing object by heating, or the like. In this case, however, the degassing operation is complicated. At a degassing time, the degassing object may be stirred and/or zeolite may be introduced into the degassing object as required. When the zeolite is used, the zeolite is preferably selected from those formed of porous materials such as biscuit, glass and polytetrafluoroethylene (Teflon). When the intended object is obtained by the ordinary temperature vacuum degassing method, the time required for the degassing operation is approximately for 0.1 to 2 hours so long as the degassing object has a kinetic viscosity of 65 cSt or less at the time of the degassing operation.

Further, when the dissolved oxygen concentration of an inert liquid having a vapor pressure of 10^{-2} Torr or less at 25°C is decreased by the freeze vacuum degassing method or the inert gas replacement method, the degassing is carried out in the same manner as in the procedures used for an inert liquid having a vapor pressure of over 10^{-2} Torr at 25°C .

With regard to inert liquids having a vapor pressure of 10^{-2} Torr or less at 25°C , the dissolved oxygen concentration is preferably decreased by the ordinary temperature vacuum degassing method out of the above three methods, since the dissolved oxygen concentration can be decreased by the operation for a shorter period of time and since the degassing operation is simple.

Specific examples of inert liquids from which inert liquids having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less can be easily obtained by the ordinary temperature vacuum degassing method include various perfluoropolyethers as shown in the following Table 1.

Table 1

5

10

15

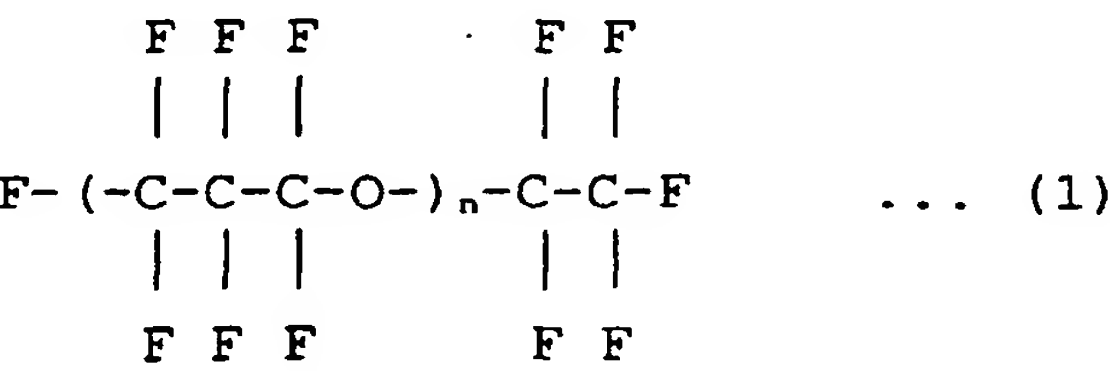
20

| Trade Name | Manufacturer | Vapor pressure (Torr) at 25°C | Kinetic viscosity (cSt) at 25°C |
|------------------|------------------------|-------------------------------|---------------------------------|
| Demnum S-20 | Daikin Industries Ltd. | 10 ⁻⁶ | 53 |
| Fomblin Z03 | Montecatini | 10 ⁻⁴ | 30 |
| ditto M03 | ditto | - | 30 |
| ditto Y04 | ditto | - | 38 |
| ditto Y06 | ditto | - | 60 |
| ditto YLVAC06/06 | ditto | 10 ⁻⁶ | 62 |
| ditto Z DEAL | ditto | 10 ⁻⁴ | 20 |
| ditto Z DIAC | ditto | 10 ⁻⁵ | 60 |
| Galden HT250 | ditto | 10 ⁻² | 10 |
| ditto HT270 | ditto | 10 ⁻² | 20 |

25

Demnum S-20 in the above Table 1 has an average molecular weight of 2,700, a breakdown voltage of 72 kV as a sample having a thickness of 2.5 mm and a volume resistivity of 10¹³ Ωcm at about 20°C or lower. The structural formula thereof is represented by the following formula (1).

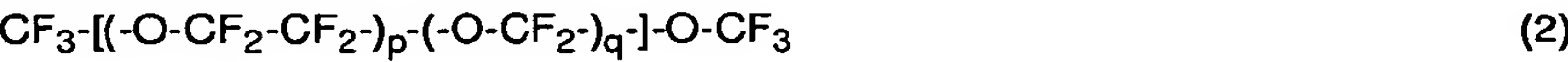
30



35

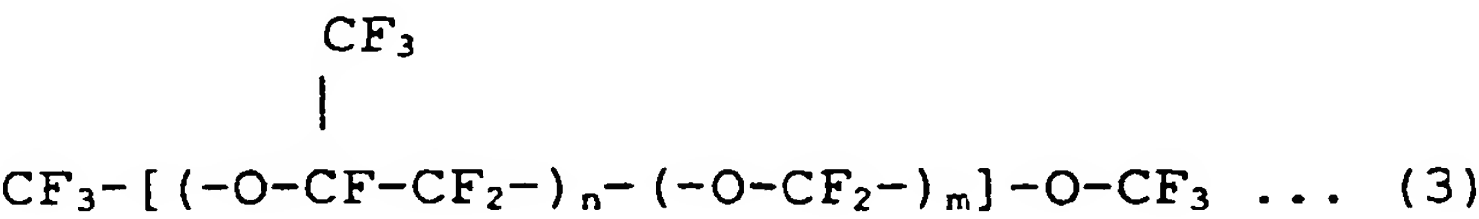
n = 10 - 20,
Average molecular weight 2,700
Further, the structural formula of Fomblin Z03 in Table 1 is represented by the following formula (2).

40



Average molecular weight 4,000
The structural formula of Galden H250 in Table 1 is represented by the following formula (3).

45



50

Average molecular weight 1,320

55

In the method of the present invention, the above inert liquid is used to form an inert liquid layer having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less on the periphery of an organic EL device. The above inert liquid is particularly preferably an inert liquid of which not only the dissolved oxygen concentration is decreased to 1 ppm or less but also the water content is decreased to 10 ppm or less. When the dissolved oxygen concentration of the inert liquid is decreased to 1 ppm or less by the ordinary temperature vacuum degassing method, the dissolved oxygen concentration is decreased to 1 ppm or less by this method and at the same time, the degassing operation is further repeated, whereby an inert liquid having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less and a water content of 10 ppm or less can be obtained. When the dissolved oxygen concentration of the inert liquid is decreased to 1 ppm or less by the inert

gas replacement method, the dissolved oxygen concentration is decreased to 1 ppm or less by this method, and at the same, the bubbling is carried out for a little longer period of time, whereby an inert liquid having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less and a water content of 10 ppm or less can be obtained. And, when the dissolved oxygen concentration of the inert liquid is decreased to 1 ppm or less by the freeze vacuum degassing method, the inert liquid is distilled under vacuum to obtain a first cut, a main cut and a last cut before or after the dissolved oxygen concentration is decreased to 1 ppm or less by this method, and the first cut and the last cut are removed, whereby an inert liquid having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less and a water content of 10 ppm or less can be obtained. When an inert liquid having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less and a water content of 10 ppm or less is used, the growth of a dark spot can be more firmly prevented.

When the above inert liquid layer is provided on the periphery of an organic EL device, the organic EL device as a whole may be immersed in the inert liquid filled in a container to form the inert liquid layer on the periphery of the above organic EL device. However, when the organic EL device is formed on a substrate, the inert liquid layer is preferably formed as follows. That is, the inert liquid layer is preferably formed by providing a housing material, which is to cover the organic EL device in combination with the above substrate while forming a space between the organic EL device and the housing material, outside the organic EL device formed on the substrate, and filling the inert liquid in the space formed by the above substrate and the above housing material. The filling of the inert liquid is carried out by injecting the inert liquid into the space through an inlet which is formed in the housing material or the substrate in advance, and the above inlet is closed after the injection of the inert liquid.

In the above case, the above housing material is a cap-shaped, plate-shaped (e.g., counterbored substrate), sheet-shaped or film-shaped material having a concave portion having an inner dimension greater than the outer dimension of the organic EL device which is to be encapsulated. The housing material is fixed onto the substrate such that it forms a substantially closed space in combination with the above substrate. In this case, the organic EL device as an encapsulating object is in a state in which it is encased in the above concave portion. When a plurality of organic EL devices are formed on a substrate, a plurality of the housing materials may be provided such that one housing material corresponds to one organic EL device, or the above housing material as one common sheet may be provided such that it corresponds to all of the organic EL devices. Further, a plurality of the above housing materials may be provided such that each housing material corresponds to a plurality of the organic EL devices as part of all of the organic EL devices. Similarly, concerning the above concave portion formed in the housing material, concave portions may be provided such that one concave portion corresponds to one organic EL device, the above concave portion may be provided such that it has a size sufficient to encase all the organic EL devices, or a plurality of the concave portions may be provided such that each concave portion can encase a plurality of the organic EL devices as part of all of the organic EL devices.

The housing material can be fixed onto the substrate with any one of various adhesives such as epoxy-resin-containing adhesives and acrylate-resin-containing adhesives. Specifically, those which difficultly permeate water and oxygen are preferable. As examples, there is ARALDITE AR-R30 (trade name of epoxy resin adhesive, supplied by Ciba Geigy). Further, there are a variety of resins such as thermosetting resins and photo-curable resins which can be used as a substitute for the above adhesive.

The material of the housing material is preferably an electrically insulating substance such as a glass and a polymer. Specific examples thereof include soda lime glass, borosilicate glass, silicate glass, silica glass, fluorescence-free glass, quartz, an acrylic resin, a styrene resin, a polycarbonate resin, an epoxy resin, polyethylene, polyester and a silicone resin. Further, when the organic EL device as an encapsulating object has insulation-coated lead wires as lead wires from the electrodes or when the housing material is fixed onto the substrate with an electrically insulating adhesive or an electrically insulating resin, the housing material may be formed of an electrically conductive material such as stainless steel or aluminum alloy.

When the inert liquid layer is formed by charging the inert liquid into the space formed between the above substrate on which the organic EL device is formed and the above housing material, the inert liquid may be injected into the above space in atmosphere, while it is preferred to inject the inert liquid into the above space in a nitrogen gas atmosphere or an argon gas atmosphere for preventing the dissolving of oxygen and water in the inert liquid at the time of the injection operation. Further, the charging may be carried out by a so-called vacuum injection method.

The above term "vacuum injection method" refers to a method in which a space to which a liquid to be injected ("injectant" hereinafter) is to be injected is maintained in a degassed state and the injectant is injected to the space in the above state or a method in which the space to which the injectant is to be injected is degassed and the injectant is injected into the space by utilizing a difference between the pressure of the space and the pressure of an atmosphere surrounding a feed source of the injectant (the former has a lower pressure). Specifically, there are the following methods (i) to (iii) below.

(i) An object (the entirety of an object having a space into which the injectant is to be injected) is immersed in a vessel containing the injectant, and in this state, heating and pressure reduction are carried out to degass the above space and the injectant is injected (see JP-B-57-47559, column 6, lines 13 to 18).

(ii) A container (feed source of the injectant) containing the injectant and an object (the entirety of an object having

a space into which the injectant is to be injected) are placed in a vacuum chamber, and the pressure in the vacuum chamber is reduced. Then, a flow is formed between the above space and the feed source of the injectant with a tube, and then the system as a whole is exposed to atmosphere to inject the injectant into the object by utilizing atmospheric pressure (see JP-B-57-47559, column 7, lines 15 to 26).

(iii) An object (the entirety of an object having a space into which the injectant is to be injected) is placed in an uncovered container, the container with the object in it is placed in a vacuum container, and the pressure in the vacuum container is reduced. In this case, the object is placed such that the injectant inlet provided to the above object is positioned close to the bottom of the above uncovered container. Then, the injectant is introduced into the above uncovered container from outside the above vacuum container, and the injectant is charged into the container until the above inlet is fully covered with the injectant. Thereafter, dry gas is introduced into the vacuum container to bring back the pressure in the vacuum container to atmospheric pressure, and the injectant is injected into the above space by utilizing a difference between the pressure (atmospheric pressure) of an atmosphere surrounding the injectant contained in the above container and the pressure in the space to which the injectant is to be injected (see JP-A-64-57590, page 2, left bottom column, line 4 to page 3, left top column, line 9).

When the inert liquid is injected, the inert liquid may be heated to increase its flowability regardless of its injection methods.

The closing of the inlet after the injection of the injectant is preferably carried out in an inert gas atmosphere such as nitrogen gas atmosphere or argon gas atmosphere rather than it is carried out in atmosphere. The inlet can be closed with one of the above adhesives or the above resins which are described as one used for fixing the housing material to the substrate.

The encapsulating as an object of the present invention can be carried out by forming an inert liquid layer having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less on the periphery of an organic EL device as described above. At the same time, the encapsulated organic EL device as an object of the present invention can be also obtained. In this case, when the above inert liquid layer is formed from the inert liquid containing an adsorbent, the encapsulation can be carried out more effectively, and there can be obtained an encapsulated organic EL device which is more effectively encapsulated.

The above adsorbent works to prevent the infiltration of oxygen and water into an organic EL device from outside when or after the organic EL device is encapsulated. The adsorbent is not specially limited so long as it adsorbs oxygen and water, while there is preferred an adsorbent which has the properties of adsorbing them in a large amount and sparingly releasing oxygen and water which are once adsorbed. The adsorbent is not specially limited in form, while an adsorbent having the form of a powder is preferred due to its large adsorption area.

Specific examples of the above adsorbent include

(1) an inorganic compound selected from activated alumina, diatomaceous earth, activated carbon, hemihydrated gypsum, phosphorus pentoxide, magnesium perchlorate, potassium hydroxide, calcium sulfate, calcium bromide, calcium oxide, zinc chloride, zinc bromide or anhydrous copper sulfate,

(2) a metal selected from the metal group consisting of lithium, beryllium, potassium, sodium, magnesium, rubidium, strontium and calcium,

(3) an alloy of metals selected from the above metal group,
and

(4) an acrylic water-absorption polymer or a methacrylic water-absorption polymer. The above adsorbents may be used alone or in combination of at least two of them.

The adsorbent is preferably used in a state in which it has sufficient capability of adsorption. For this reason, it is preferred to remove oxygen and water adsorbed to the adsorbent before use (the treatment for removing oxygen and water adsorbed to the adsorbent will be referred to as "activation treatment" hereinafter). Although differing depending upon the kind of the adsorbent, the activation treatment of the adsorbent can be carried out by a method in which the adsorbent is heated, the adsorbent is subjected to vacuuming, the adsorbent is allowed to stand in an inert gas current or the surface of the adsorbent is cut and removed or by a method combining at least two of these methods.

The activation treatment of the adsorbent is preferably carried out while the adsorbent is isolated from atmosphere. Further, the activation-treated adsorbent is also preferably kept isolated from atmosphere until it is used for forming the intended inert liquid layer (layer containing the adsorbent) in order to prevent a decrease in the activity thereof. For example, preferably, the activation treatment by heating or vacuuming is carried out in a state in which the adsorbent is placed in a container capable of blocking off atmosphere, such as a container with a vacuum valve, the valve is closed after the activation treatment is completed, and the activation-treated adsorbent is stored in a state in which atmosphere is blocked off, until it is used.

The amount of the adsorbent can be selected as required depending upon the kind of the adsorbent. Generally, the larger the amount of the adsorbent is, the higher the adsorption effect is. However, when the amount of the adsorbent

is too large, (a) a mixture prepared by adding the adsorbent to the above inert liquid may show an extremely decreased fluidity, so that it is sometimes difficult to form the intended inert liquid layer (layer containing the adsorbent), and (b) the adsorbent may damage an organic EL device.

When an adsorbent having a small particle diameter is used to prepare the above mixture, the mixture shows a decreased fluidity than a mixture containing an adsorbent having the same weight but having a larger particle diameter, and as a result, it is more difficult to form the intended inert liquid layer (layer containing the adsorbent). However, the adsorbent having a small particle diameter shows a larger adsorption amount since it has a larger effective area than the adsorbent having a large particle diameter. It cannot therefore mean that an encapsulating effect is low when the amount (weight) of the adsorbent is small. Although depending upon the kind and the particle diameter of the adsorbent, the amount of the adsorbent is preferably in the range of approximately from 1 mg to 10 g per milliliter of the above inert liquid, more preferably in the range of approximately from 30 mg to 3 g per milliliter of the above inert liquid.

The inert liquid used for forming the intended inert liquid layer containing the adsorbent may be an inert liquid which has a dissolved oxygen concentration of more than 1 ppm before it contains the adsorbent and which shows a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less after it contains the adsorbent. For forming the inert liquid layer having a higher encapsulating effect, however, the inert liquid preferably has a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less before it contains the adsorbent. The inert liquid used in the above case is therefore preferably an inert liquid whose dissolved oxygen concentration is decreased to 1 ppm or less by the above ordinary temperature vacuum degassing method, freeze vacuum degassing method or inert gas replacement method.

When the inert liquid containing the adsorbent is used to form the inert liquid layer on the periphery of an organic EL device, the organic EL device as a whole may be immersed in the inert liquid (liquid containing the adsorbent) filled in a container to form the inert liquid layer on the periphery of the above organic EL device. However, when the organic EL device is formed on a substrate, the inert liquid layer is preferably formed by providing a housing material, which is to cover the organic EL device in combination with the above substrate while forming a space between the organic EL device and the housing material, outside the organic EL device formed on the substrate, and filling the inert liquid (liquid containing the adsorbent) in the space formed by the above substrate and the above housing material.

Specific examples of the method of providing the above inert liquid layer on the periphery of an organic EL device by utilizing a housing material include the following methods (A) and (B).

(A) A method in which the adsorbent and the inert liquid are mixed to prepare a mixture and the mixture is filled in the above space formed by the substrate on which the organic EL device is formed and the housing material which covers the organic EL device on the substrate, to form the intended inert liquid layer.

When the inert liquid layer is formed by the above method, the above mixture should not be prepared in atmosphere, and it is preferred to prepare the above mixture in a dry inert gas atmosphere (nitrogen gas atmosphere or argon gas atmosphere), for example, in a gloved box in which the atmosphere is purged with a dry inert gas. When the mixture is prepared, the inert liquid (liquid containing no adsorbent) may be poured into a container in which the adsorbent is placed, or the adsorbent may be placed in a container containing the inert liquid (liquid containing no adsorbent). Further, a container for preparing the mixture may be prepared in addition to a container containing the adsorbent and a container containing the inert liquid (liquid containing no adsorbent), and the adsorbent and the inert liquid may be placed in the above container concurrently or separately. When the adsorbent and the inert liquid are separately placed in the container for preparing the mixture, any one of them may be placed first.

The intended inert liquid layer can be formed from the above mixture by charging the mixture into the above space through an inlet provided in advance in the above substrate on which the organic EL device is formed or the housing material covering the organic EL device on the substrate and closing the outlet after the charging. It is also preferred to form the inert liquid layer in a dry inert gas atmosphere.

The above method is suitable for forming the inert liquid layer from the mixture (inert liquid containing the adsorbent) having a high fluidity.

(B) A method in which the adsorbent and the inert liquid are separately charged into the above space formed by the substrate on which the organic EL device is formed and the housing material covering the organic EL device on the substrate, to form the intended inert liquid layer.

The above method can be further classified into the following three methods (b1) to (b3). In any one of these methods, it is preferred to form the inert liquid layer in an inert gas atmosphere.

(b1) The adsorbent is placed in a region within the above space on the organic EL device and on the substrate on which the organic EL device is formed, then, the housing material is provided on the substrate, and the inert liquid (liquid containing no adsorbent) is charged into the above space through an inlet provided in the above substrate or the above housing material in advance, thereby to form the intended inert liquid layer. The inlet is closed after the inert liquid (containing no adsorbent) is charged.

(b2) The adsorbent is placed in a concave portion which is present in the housing material and concerned in forming the above space, the housing material is provided on the substrate on which the organic EL device is formed, and then the inert liquid (liquid containing no adsorbent) is charged into the above space through an inlet provided

in the above substrate or the above housing material in advance, thereby to form the intended inert liquid layer. The inlet is closed after the inert liquid (containing no adsorbent) is charged.

(b3) The housing material is provided on the substrate on which the organic EL device is formed, and the adsorbent and the inert liquid are charged into the above space through an inlet provided in the above substrate or the above housing material in advance one after the other, thereby to form the intended inert liquid layer. The inlet is closed after the adsorbent and the inert liquid (containing no adsorbent) are charged.

The organic EL device as an encapsulating object in the method of the present invention will be explained hereinafter.

The device constitution of the organic EL device as an encapsulating object in the present invention is not specially limited, and the object can include organic EL devices having various device constitutions. The constitution of the organic EL device in the present invention includes various device constitutions.

Specific examples of layer structure of the organic EL device in which light comes out through the substrate side include the following (1) to (4) as to the lamination order on the substrate surface.

- (1) Anode/light-emitting layer/cathode
- (2) Anode/light-emitting layer/electron-injecting layer/cathode
- (3) Anode/hole-transporting layer/light-emitting layer/cathode
- (4) Anode/hole-transporting layer/light-emitting layer/electron-injecting layer/cathode

The above light-emitting layer is formed of one or a plurality of organic light-emitting materials, while it is sometimes formed of a mixture of an organic light-emitting material with a hole-transporting material and/or an electron-injecting material. In some cases, further, a protective layer is formed on the periphery of a device having the above layer structure to cover the device, for preventing the infiltration of water into the device.

The above organic EL device is generally formed by consecutively forming each layer including the anode and the cathode on a substrate, while the substrate is not used in some cases. When the substrate side is a surface through which light comes out (light-emitting surface) in an organic EL device formed on a substrate, the layers are consecutively laminated such that the anode is present immediately on the substrate. In this case, the substrate is formed of a substance which has a high transmittance (about 80 % or more) to light emitted from the organic EL device (EL light), and specifically, it is selected from a plate-shaped substrate, a sheet-shaped substrate or a film-shaped substrate formed of transparent glass, transparent plastic or quartz.

As materials for the anode, the cathode, the light-emitting layer, the hole-transporting layer, electron-injecting layer and the protective layer, a variety of materials can be used for each. For example, the anode material is preferably selected from metals, alloys or electrically conductive compounds having a high work function (e.g., at least 4 eV) or mixtures of these. Specific examples thereof include metals such as gold and nickel and dielectric transparent materials such as CuI, ITO, SnO₂ and ZnO. Although depending upon materials, the thickness of the anode can be generally set in the range of from 10 nm to 1 μ m as required.

Further, the cathode material is preferably selected from metals, alloys or electrically conductive compounds having a low work function (e.g., 4 eV or less) or mixtures of these. Specific examples thereof include sodium, sodium-potassium alloy, magnesium, lithium, alloy and mixture of magnesium with silver, aluminum, Al/Al₂O₃, indium, and rare earth metals such as ytterbium. Although depending upon materials, the thickness of the cathode can be generally set in the range of from 10 nm to 1 μ m as required.

In each of the anode and the cathode, the sheet resistance is preferably several hundreds Ω/\square or less. The size of the work function used as the standard for electing the anode material and the cathode material shall not be limited to 4 eV.

The material for the light-emitting layer (organic light-emitting material) can be selected from those which can form a light-emitting layer of an organic EL device, i.e., a layer having injection functions of being able to receive holes injected from the anode or the hole-transporting layer and at the same time being able to receive electrons injected from the cathode or the electron-injecting layer when an electric field is applied, transportation functions of moving injected charges (at least electrons or holes) under the force of an electric field, and light emission functions of providing a site where electrons and holes are recombined to emit light. Specific examples thereof include benzothiazole-, benzimidazole- and benzoxazole-containing fluorescent whiteners, a metal chelated oxinoid compound, a styrylbenzene-containing compound, a distyrylpyrazine derivative, a polyphenyl-containing compound, 12-phthaloperinone, 1,4-diphenyl-1,3-butadiene, 1,1,4,4-tetraphenyl-1,3-butadiene, a naphthalimide derivative, a perylene derivative, an oxadiazole derivative, an aldazine derivative, a pyrazoline derivative, a cyclopentadiene derivative, a pyrrolopyrrole, derivative, a styrylamine derivative, a coumarine-containing compound, an aromatic dimethyldiene compound and a metal complex of 8-quinolinol derivative. Although not specially limited, the thickness of the light-emitting layer is generally set in the range of from 5 nm to 5 μ m as required.

The material for the hole-transporting layer (hole-transporting material) may be any material so long as it has one

of the capability of transporting holes and the property of being barriers against electrons. Specific examples thereof include a triazole derivative, an oxadiazole derivative, an imidazole derivative, a polyaryllalkane derivative, a pyrazoline derivative, a pyrazolone derivative, a phenylenediamine derivative, an arylamine derivative, an amino-substituted chalcone derivative, an oxazole derivative, styrylanthracene derivative, a fluorenone derivative, a hydrazone derivative, a stilbene derivative, a silazane derivative, a polysilane-containing compound, an aniline-containing compound, electrically conductive oligomers having a high molecular weight such as a thiophene oligomer, a porphyrin compound, an aromatic tertiary amine compound, a styrylamine compound and an aromatic dimethyldiene-containing compound. The thickness of the hole-transporting layer is not specially limited, either, while it is generally set in the range of 5 nm to 5 μ m as required. The hole-transporting layer may have the structure of a monolayer formed of one or at least two of the above materials, or it may have the structure of a plurality of layers each of which is formed of the same material or different materials.

The electron-injecting layer may be any layer so long as it has the function of transferring electrons injected from the cathode to the light-emitting layer. Specific examples of the material therefor (electron-injecting material) include heterocyclic tetracarboxylic acid anhydrides such as a nitro-substituted fluorenone derivative, an anthraquinodimethane derivative, a diphenylquinone derivative, a thiopyran dioxide derivative and a naphthaleneperylene, carbodiimide, a fluorenylidene methane derivative, an anthraquinodimethane derivative, an anthrone derivative, an oxadiazole derivative, a metal complex of 8-quinolinol derivative, metal-free phthalocyanine, metal phthalocyanine, compounds formed by replacing the terminal of these compounds with an alkyl group or a sulfone group, and a distyrylpyrazine derivative. The thickness of the electron-injecting layer is not specially limited, either, while it is generally set in the range of from 5 nm to 5 μ m as required. The electron-injecting layer may have the structure of a monolayer formed of one or at least two of the above materials, or it may have the structure of a plurality of layers each of which is formed of the same material or different materials.

The metal complex of 8-quinolinol derivative can be used as a material for the light-emitting layer and as a material for the electron-injecting layer as described above. Specific examples of the metal complex of 8-quinolinol derivative include tris(8-quinolinol)aluminum, bis(8-quinolinol)magnesium, bis(benzo-8-quinolinol)zinc, bis(2-methyl-8-quinolate aluminum oxide, tris(8-quinolinol)indium, tris(5-methyl-8-quinolinol)aluminum, 8-quinolinolithium, tris(5-chloro-8-quinolinol)gallium, bis(5-chloro-8-quinolinol)calcium, tris(5,7-dichloro-8-quinolinol)aluminum, tris(5,7-dibromo-8-hydroxyquinolinol)aluminum, bis(8-quinolinol)beryllium, bis(2-methyl-8-quinolinol)beryllium, bis(8-quinolinol)zinc, bis(2-methyl-8-quinolinol)zinc, bis(8-quinolinol)tin, and tris(7-propyl-8-quinolinol)aluminum.

Specific examples of the material for the protective layer include a copolymer obtained by copolymerizing a monomer mixture containing tetrafluoroethylene and at least one comonomer, a fluorine-containing copolymer of which the copolymer main chain contains a cyclic structure, polyethylene, polypropylene, polymethyl methacrylate, polyimide, polyurea, polytetrafluoroethylene, polychlorotrifluoroethylene, polydichlorodifluoroethylene, a copolymer from chlorotrifluoroethylene and dichlorodifluoroethylene, a water-absorption substance having a water absorption ratio of at least 1 %, a humidity-preventive substance having a water absorption ratio of 0.1 % or less, metals such as In, Sn, Pb, Au, Cu, Ag, Al, Ti and Ni, metal oxides such as MgO, SiO, SiO₂, Al₂O₃, GeO, NiO, CaO, BaO, Fe₂O₃, Y₂O₃ and TiO₂, and metal fluorides such as MgF₂, LiF, AlF₃ and CaF₂.

Further, the methods of forming the layers (including the anode and the cathode) which constitute the organic EL device as an encapsulating object are not specially limited. As methods of forming the anode, the cathode, the light-emitting layer, the hole-transporting layer and the electron-injecting layer, for example, a vacuum deposition method, a spin coating method, a casting method, a sputtering method and an LB method may be applied. For forming the light-emitting layer, however, it is preferred to apply any method (a vacuum deposition method, a spin coating method, a casting method or an LB method) other than the sputtering method. The light-emitting layer is particularly preferably a molecule-deposited film. The term "molecule-deposited film" refers to a thin film formed by deposition from a material compound in a gaseous state or a film formed by solidifying a material compound which is in a solution or liquid state. Generally, the above molecule-deposited film is distinguishable from a thin film formed by an LB method (molecule-accumulated film) on the basis of differences in cohesive structure and high-order structure and functional differences caused by them. When the light-emitting layer is formed by a spin coating method, a coating solution is prepared by dissolving a binder such as a resin and a material compound in a solvent.

The protective layer can be formed by any one of a vacuum deposition method, a spin coating method, a sputtering method, a casting method, an MBE (molecular beam epitaxy) method, a cluster ion beam method, an ion plating method, a plasma polymerization method (high-frequency excited ion plating method), a reactive sputtering method, a plasma CVD method, a laser CVD method, a heat CVD method and a gas source CVD method.

The method of forming each layer can be changed as required depending upon materials used. When the vacuum deposition method is used for forming each layer which constitutes the organic EL device, the organic EL device can be formed by the vacuum deposition method alone, which is advantageous for simplifying facilities and decreasing the production time.

In the encapsulated organic EL device of the present invention, obtained by providing the above inert liquid layer on the periphery of an organic EL device as an encapsulating object, the presence of the inert liquid layer firmly pre-

vents the occurrence of a dark spot and the growth of a dark spot, and the device therefore has a longer life.

The present invention will be further explained by contrasting Examples and Comparative Examples hereinafter, while the present invention shall not be limited to the following Examples. The method of preparing organic EL devices used as encapsulating objects in Examples and Comparative Examples will be explained first.

When an organic EL device as an encapsulating object was produced, a transparent substrate obtained by forming an ITO film having a thickness of 100 nm on a 25 mm x 75 mm x 1.1 mm glass substrate was provided first. The substrate was measured for a light transmittance with UV-3100PC supplied by Shimadzu Corporation, to show about 80 % in a wavelength region of 400 to 600 nm. The substrate was ultrasonically washed in isopropyl alcohol for 5 minutes and in pure water for 5 minutes, and the washed substrate was further UV-ozone-cleaned with an apparatus supplied by SAMCO International Laboratories.

Then, the substrate was fixed to a substrate holder in a commercially available vapor deposition apparatus (supplied by ULVAC Japan, Ltd.), and 200 mg of N,N'-bis(3-methylphenyl-N,N'-diphenyl[1,1'-biphenyl]-4,4'-diamine (to be abbreviated as "TPD" hereinafter) was placed in a resistance heating boat formed of molybdenum. Further, 200 mg of 4,4'-bis(2,2'-diphenylvinyl)biphenyl (to be abbreviated as "DPVBi" hereinafter) was placed in another resistance heating boat formed of molybdenum, and then the vacuum chamber was pressure-decreased to 1×10^{-4} Pa.

Then, the boat with TPD in it was heated to 215 to 220°C to deposit TPD on the above ITO film at a deposition rate of 0.1 to 0.3 nm/s and to form a hole-transporting layer having a thickness of 60 nm. In this case, the substrate had a temperature of room temperature. While the above-obtained product was allowed to remain in the vacuum chamber after the formation of the hole-transporting layer, the above-boat with DPVBi in it was heated up to 240°C to deposit DPVBi on the hole-transporting layer at a deposition rate of 0.1 to 0.3 nm/s to form a light-emitting layer having a thickness of 40 nm. In this case, the substrate also had a temperature of room temperature.

The above-obtained product was taken out of the vacuum chamber, a mask formed of stainless steel was placed on the above light-emitting layer, and the resultant set was again fixed to the substrate holder. Then, 200 mg of tris(8-quinolinol)aluminum (to be abbreviated as "Alq₃" hereinafter) was placed in one boat formed of molybdenum, and 1 g of a magnesium ribbon was placed in the other boat formed of molybdenum. Further, 500 mg of a silver wire was placed in a basket formed of tungsten, and these boats were set in the vacuum chamber.

Then, the vacuum chamber was pressure-decreased to 1×10^{-4} Pa, and thereafter, the boat with Alq₃ in it was heated up to 230°C to deposit Alq₃ on the above light-emitting layer at a deposition rate of 0.01 to 0.03 nm/s and to form an electron-injecting layer having a thickness of 20 nm. Further, the silver was deposited on the above electron-injecting layer at a deposition rate of 0.1 nm/s, and at the same time, the magnesium was deposited on the above electron-injecting layer at a deposition rate of 1.4 nm/s, to form an opposite electrode having a thickness of 150 nm and being formed of mixed metals of magnesium and silver. The opposite electrode was measured for a reflectance with UV-3100PC supplied by Shimadzu Corporation to show 80 % in the wavelength region of 400 to 600 nm.

The opposite electrode was finally formed as described above, to give an organic EL device as an encapsulating object. The organic EL device was a device in which an ITO film as an anode, a TPD layer as a hole-transporting layer, a DPVBi layer as a light-emitting layer, an Alq₃ layer as an electron-injecting layer and a layer of magnesium-silver mixed metals as an opposite electrode (cathode) were consecutively laminated on one main surface of the glass substrate. Part of the ITO film and part of the layer of magnesium-silver mixed metals worked as lead wires from the electrodes, and the light-emitting layer had a size of 6 mm x 10 mm when viewed as a flat surface.

Example 1

(1) Preparation of inert liquid having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less

As an inert liquid of which the dissolved oxygen concentration was not adjusted, there was provided perfluoropolyether (Demnum S-20 (trade name; vapor pressure at 25°C, 10^{-6} Torr; kinetic viscosity at 25°C, 53 cSt), supplied by Daikin Industries Ltd.). A proper amount of the above Demnum S-20 was placed in a glass sample container with a vacuum valve, and the sample container and a vacuum pump with a diffusion pump (ULVAC VPC-050, supplied by ULVAC Japan, Ltd.) were connected to each other with a flange.

Then, zeolite formed of polytetrafluoroethylene (Teflon) was inserted into the Demnum S-20 in the above sample container, and while the Demnum was stirred at room temperature, the sample container was vacuumed to 10^{-4} Torr to exhaust dissolved oxygen by an ordinary temperature vacuum degassing method for about 30 minutes until no foaming was found.

The above-prepared inert liquid had a dissolved oxygen concentration of 0.05 ppm and a water content of 5 ppm. The dissolved oxygen concentration was measured with SUD-1 (trade name of a measuring apparatus) supplied by Central Kagaku, Ltd. In a gloved box in which the atmosphere was purged with nitrogen gas, the inert liquid was flowed down a sensor portion of the above apparatus at a constant flow rate of 50 ml/minute, and when displayed values were stabilized after about 20 seconds, the measurement value was read. Further, the inert liquid was measured for a water content by a Karl Fischer's titration method.

(2) Encapsulation

First, there was provided a cap-shaped housing material formed of glass (counterbored substrate supplied by Howa Industries). The housing material had one concave portion having an inner dimension of 13 mm x 13 mm x 1 mm and had an outer dimension of 15 mm x 15 mm x 1.8 mm. Further, an inlet for charging the inert liquid was formed in the bottom of the concave portion of the housing material.

Then, the glass substrate on which the above organic EL device was formed and the above housing material were bonded to each other with an epoxy resin adhesive (ARALDITE AR-R30, supplied by Ciba Geigy) such that the organic EL device as an encapsulating object was placed within the above concave portion. In this case, the organic EL device was present in a space formed by the concave portion of the housing material and the substrate, and the organic EL device and the housing material were out of contact.

The resultant set was allowed to stand for 3 hours to cure the adhesive, and then the set was vacuum-dried with a vacuum desiccator. The vacuum-dried set was transferred into a gloved box in which the atmosphere was purged with nitrogen gas, and in the gloved box, the inert liquid prepared in the above (1) was charged into the space formed by the concave portion of the housing material and the substrate through the inlet formed in the housing material. In the gloved box, after the charging of the inert liquid, the above inlet was closed with an epoxy resin adhesive (ARALDITE AR-R30, supplied by Ciba Geigy), and the set was allowed to stand in the gloved box for about 3 hours until the adhesive was cured.

An inert liquid layer was formed on the periphery of the organic EL device as an encapsulating object by charging the inert liquid prepared in the above (1) into the space formed by the concave portion of the housing material and the substrate, whereby the encapsulating as an object was performed. At the same time, an encapsulated organic EL device as an object was obtained. Fig. 1 shows a schematic cross sectional view of the encapsulated organic EL device.

As shown in Fig. 1, the above-obtained encapsulated organic EL device 1 of the present invention has an inert liquid layer 20 of the inert liquid prepared in the above (1) formed on the periphery of an organic EL device 10 as an encapsulating object. The organic EL device 10 as an encapsulating object is formed by consecutively laminating an ITO film 12 as an anode, a TPD layer 13 as a hole-transporting layer, a DPVBi layer 14 as a light-emitting layer, an Alq₃ layer as an electron-injecting layer and a layer 16 of magnesium-silver mixed metals as an opposite electrode (cathode) on the a glass substrate 11. Part 12a of the ITO film 12 and part 16a of the layer 16 of magnesium-silver mixed metals constitute lead wires from the electrodes. The organic EL device 10 is present in a space formed by the concave portion of the housing material 18 fixed onto the glass substrate 11 with an epoxy resin adhesive 17 and the glass substrate 11, and the space was charged with the inert liquid prepared in the above (1). As a result, the inert liquid layer 20 is formed on the periphery of the organic EL device 10. The inert liquid is a liquid charged through an inlet 19 provided in the housing material 18, and the inlet 19 is closed with an epoxy resin adhesive 17a after the charging of the inert liquid.

(3) Evaluation of encapsulating effect

The encapsulated organic EL device obtained in the above (2) was connected to a direct-current constant-current electric source through the two lead wires of the organic EL device, and electricity was applied such that an initial brightness at 25°C in atmosphere was 100 cd/m². In this case, the current value was 0.56 mA, and the voltage value was 9 V. The brightness was measured with a luminance meter (trade name CS-100) supplied by Minolta Camera Co., Ltd.

After the above electric application, an enlarged photograph of the light-emitting surface was taken (magnification, 10 times), and a ratio of the total area of dark spots viewed as a flat surface to the area of the light-emitting surface viewed as a flat surface (to be referred to as "no-light emission area ratio" hereinafter) was determined on the basis of the above photograph, to obtain 0.43 %. Further, one dark spot was measured for a diameter to show 18.4 μm.

Further, 139 hours after the electric application was initiated, a no-light emission area ratio was determined in the same manner as above, and the same dark spot as that measured above was measured for a diameter. Further, the growth ratio of a dark spot was defined to be a diameter increment value per hour, and the value thereof was determined. Table 2 shows the results.

Example 2

Ordinary temperature vacuum degassing was carried out under the same conditions as those in Example 1(1) except that the inert liquid of which the dissolved oxygen concentration was not adjusted was replaced with perfluoropolyether (Fomblin Z03 (trade name; vapor pressure at 25°C, 10⁻⁴ Torr; kinetic viscosity at 25°C, 30 cSt), supplied by Montecatini), to prepare a inert liquid having a dissolved oxygen concentration of 0.1 ppm and a water content of 5 ppm. Then, an encapsulating as an object was carried out under the same conditions as those in Example 1 except that the inert liquid used for forming an inert liquid layer on the periphery of an organic EL device was replaced with the above-prepared inert liquid. At the same time, an encapsulated organic EL device as an object was also obtained.

The above encapsulated organic EL device was evaluated for encapsulating effects in the same manner as in Example 1(3) except that the second calculation or measurement of a no-light emission area and a dark spot diameter was conducted 152 hours after the initiation of electric application. Table 2 shows the results.

Comparative Example 1

Ordinary temperature vacuum degassing was carried out under the same conditions as those in Example 1(1) except that the inert liquid of which the dissolved oxygen concentration was not adjusted was replaced with perfluoro-amine (Fluorinert FC-70 (trade name; vapor pressure at 25°C, 0.1 Torr, supplied by Sumitomo-3M Co., Ltd.). However, the degassing was not fully performed since the above inert liquid had a higher vapor pressure than 10^{-2} Torr at 25°C, and the prepared inert liquid had a dissolved oxygen concentration of 2 ppm or outside the range limited in the present invention. Further, the inert liquid had a water content of 20 ppm. Further, an organic EL device was encapsulated under the same conditions as those in Example 1 except that the inert liquid used for forming an inert liquid layer on the periphery of the organic EL device was replaced with the above inert liquid, to give an encapsulated organic EL device.

The above encapsulated organic EL device was evaluated for encapsulating effects in the same manner as in Example 1(3) except that the second calculation or measurement of a no-light emission area and a dark spot diameter was conducted 124 hours after the initiation of electric application. Table 2 shows the results.

Comparative Example 2

Ordinary temperature vacuum degassing was carried out under the same conditions as those in Example 1(1) except that the inert liquid of which the dissolved oxygen concentration was not adjusted was replaced with perfluoro-amine (Fluorinert FC-43 (trade name; vapor pressure at 25°C, 1.3 Torr, supplied by Sumitomo-3M Co., Ltd.). However, the degassing was not fully performed since the above inert liquid had a higher vapor pressure than 10^{-2} Torr at 25°C, and the prepared inert liquid had a dissolved oxygen concentration of 10 ppm or outside the range limited in the present invention. Further, the inert liquid had a water content of 50 ppm. Further, an organic EL device was encapsulated under the same conditions as those in Example 1 except that the inert liquid used for forming an inert liquid layer on the periphery of the organic EL device was replaced with the above inert liquid, to give an encapsulated organic EL device.

The above encapsulated organic EL device was evaluated for encapsulating effects in the same manner as in Example 1(3) except that the second calculation or measurement of a no-light emission area and a dark spot diameter was conducted 136 hours after the initiation of electric application. Table 2 shows the results.

Comparative Example 3

An organic EL device was encapsulated under the same conditions as those in Example 1 except that an organic EL device as an encapsulating object was encapsulated under the same conditions as those in Example 1 except that the perfluoropolyether (Demnum S-20 (trade name), supplied by Daikin Industries Ltd.) which was vacuum-degassed in Example 1 was replaced with an inert liquid which was perfluoropolyether (Demnum S-20 (trade name), supplied by Daikin Industries Ltd.) not vacuum-degassed, to give an encapsulated organic EL device. The above inert liquid had a dissolved oxygen concentration of 8.0 ppm, or outside the range limited in the present invention.

The above encapsulated organic EL device was evaluated for encapsulating effects in the same manner as in Example 1(3) except that the second calculation or measurement of a no-light emission area and a dark spot diameter was conducted 115 hours after the initiation of electric application. Table 2 shows the results.

Table 2

| | No-light emission area ratio (%) | | Diameter of dark spot (μm) | | Growth rate of dark spot ($\mu\text{m}/\text{hour}$) |
|--|----------------------------------|------------------------------------|---|------------------------------------|--|
| | Initial | After predetermined period of time | Initial | After predetermined period of time | |
| Ex.1 | 0.43 | 0.51 | 18.4 | 20.1 | 1.22×10^{-2} |
| Ex.2 | 0.43 | 0.59 | 18.4 | 19.1 | 4.61×10^{-3} |
| CEx.1 | 0.45 | 3.9 | 18.3 | 45.7 | 2.21×10^{-1} |
| CEx.2 | 0.42 | 12.3 | 18.5 | 121.9 | 7.60×10^{-1} |
| CEx.3 | 0.46 | 12.4 | 18.8 | 82.5 | 5.55×10^{-1} |
| Ex. = Example, CEx. = Comparative Example *: "After predetermined period of time" in Example 1 stands for 139 hours after the electric application, "After predetermined period of time" in Example 2 stands for 152 hours after the electric application, "After predetermined period of time" in Comparative Example 1 stands for 124 hours after the electric application, "After predetermined period of time" in comparative Example 2 stands for 136 hours after the electric application, and "After predetermined period of time" in Comparative Example 3 stands for 115 hours after the electric application. | | | | | |

As is shown in Table 2, the encapsulated organic EL devices obtained in Examples 1 and 2 showed almost no changes from initial values in the no-light emission area ratio and the diameter of a dark spot 139 hours or 152 hours after the electric application, and the growth rate of a dark spot in each was also low. These data show that each of the inert liquid layers formed in Examples 1 and 2 firmly prevented the growth of dark spots.

In contrast, in the encapsulated organic EL devices obtained in Comparative Examples 1 to 3, the no-light emission ratios and the diameters of dark spots were greatly larger than their initial values after predetermined periods of time passed after the electric application, and the growth ratio in each Comparative Example was much larger than those ratios in Examples 1 and 2.

Example 3

(1) Preparation of inert liquid having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less

An inert liquid having a dissolved oxygen concentration of 0.05 ppm and a water content of 5 ppm was prepared in the same manner as in Example 1(1).

(2) Activation treatment of adsorbent

Activated alumina (supplied by Hiroshima Wako Purechemical Industries Ltd.; particle diameter about 300 mesh) was provided as an adsorbent. A proper amount of the activated alumina was placed in a glass sample container with a vacuum valve, and the sample container and a vacuum pump were connected to each other with a flange.

Then, the above sample container was vacuumed to 10^{-4} Torr at room temperature, and while the portion retaining the activated alumina in the above sample container was heated at 280°C with a heater, the sample container was further vacuumed. The above vacuuming was continued for 5 hours until the generation of gas from the activated alumina was not found so that a vacuum degree was stabilized, and then the vacuum valve was closed for storage.

(3) Encapsulation

The same cap-shaped housing material as the cap-shaped housing material used in Example 1(2) was provided. The housing material and an organic EL device were bonded to each other in the same manner as in Example 1(2), and then the resultant set was vacuum-dried with a vacuum desiccator. The vacuum-dried set was transferred into a gloved box in which the atmosphere was purged with nitrogen gas.

Further, the above sample container containing the inert liquid prepared in the above (1) and the above sample

container containing the adsorbent activation-treated in the above (2) were transferred into the above gloved box. Then, a predetermined amount of the adsorbent was charged into the sample container containing the inert liquid, and the mixture was stirred to prepare an inert liquid containing the adsorbent (to be referred to as "mixture liquid" hereinafter). The mixture liquid contained 500 mg of the adsorbent per milliliter of the inert liquid, and the mixture liquid had a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less. Thereafter, the mixture liquid was charged into a space formed by the concave portion of the housing material and the substrate through an inlet provided in the above housing material.

After the charging of the mixture liquid, in the above gloved box, the above inlet was closed with an epoxy resin adhesive (ARALDITE AR-R30, supplied by Ciba Geigy), and the set was allowed to stand in the gloved box for about 3 hours until the adhesive was cured.

An inert liquid layer was formed on the periphery of the organic EL device as an encapsulating object by charging the above mixture liquid into the space formed by the concave portion of the housing material and the substrate, whereby the encapsulating as an object was performed. At the same time, an encapsulated organic EL device as an object was obtained. Fig. 2 shows a schematic cross sectional view of the encapsulated organic EL device.

As shown in Fig. 2, the above-obtained encapsulated organic EL device 30 has an inert liquid layer 31 formed on the periphery of an organic EL device 10 as an encapsulating object, the inert liquid layer 31 being formed of mixture liquid (inert liquid containing adsorbent) consisting of an inert liquid 31a prepared in the above (1) and an adsorbent 31b activation-treated in the above (2). In the encapsulated organic EL device shown in Fig. 2, the same members as those in Fig. 1 are shown by the same reference numerals, and explanations thereof are omitted.

(4) Evaluation of encapsulating effects

The encapsulated organic EL device obtained in the above (3) was evaluated for encapsulating effects in the same manner as in Example 1(3) except that the calculation of a no-light emission area ratio and the measurement of a dark spot diameter were conducted 5 days and 30 days after the initiation of electric application. Table 3 shows the results.

Example 4

An Mg powder (supplied by Kojundo Chemical Laboratory Co., Ltd.; particle diameter 80 mesh or less) was provided as an adsorbent, and the Mg powder was activation-treated as follows.

First, a proper amount of the Mg powder was placed in a beaker, and a 1M hydrochloric acid aqueous solution was added. The mixture was allowed to stand for several minutes, and then filtered, and the residue (Mg powder) was rinsed with a sufficient amount of anhydrous ethanol. The rinsed residue (Mg powder) was transferred to a glass sample container with a vacuum valve, and the valve of the sample container was closed. The procedures so far were carried out in a gloved box in which dry nitrogen gas had been blown. The above sample container (containing the residue (Mg powder)) of which the valve was closed was taken out of the gloved box, and the Mg powder in the container was subjected to vacuuming in the same manner as in Example 1 until the evaporation of ethanol was not found so that the vacuum degree was stabilized. The above vacuuming was carried out at room temperature without heating a portion retaining the Mg powder in the above sample container.

An organic EL device was encapsulated in the same manner as in Example 3 except that the adsorbent was replaced with the Mg powder which was activation-treated as described above, and at the same time, an encapsulated organic EL device was obtained. In this case, the inert liquid layer contained 500 mg of the adsorbent per milliliter of the inert liquid, and had a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less.

The above encapsulated organic EL device was evaluated for encapsulating effects in the same manner as in Example 3(4). Table 3 shows the results.

Example 5

An organic EL device was encapsulated in the same manner as in Example 3 except that the adsorbent was replaced with a powder (particle diameter 300 mesh or less) of $\text{CaSO}_4 \cdot 1/2\text{H}_2\text{O}$ (calcined gypsum; supplied by Wako Purechemical Industries Ltd.), that the heating temperature by a heater for the activation treatment of the adsorbent was changed to 240°C and that the mixture liquid was replaced with a mixture liquid (inert liquid containing the inert liquid) containing 200 mg of the adsorbent per milliliter of the inert liquid, and at the same time, an encapsulated organic EL device was obtained. In this case, the inert liquid layer had a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less.

The above encapsulated organic EL device was evaluated for encapsulating effects in the same manner as in Example 3(4). Table 2 shows the results.

Referential Example 1

An organic EL device was encapsulated in the same manner as in Example 3 except that no adsorbent was used.

The encapsulated organic EL device was evaluated for encapsulating effects in the same manner as in Example 3(4). Table 3 shows the results.

Comparative Example 4

An organic EL device was encapsulated in the same manner as in Example 3 except that perfluoropolyether (Demnum S-20 (trade name), supplied by Daikin Industries Ltd.) was used as an inert liquid without vacuum-degassing it.

The above encapsulated organic EL device was evaluated for encapsulating effects in the same manner as in Example 3(4). Table 3 shows the results.

Comparative Example 5

An organic EL device was encapsulated in the same manner as in Example 3 except that activated alumina (particle diameter about 300 mesh, supplied by Hiroshima Wako Purechemical Industries Ltd.) was exposed to atmosphere and then used as an adsorbent without activating-treating it. The mixture liquid (inert liquid containing the adsorbent) used for forming an inert liquid layer had a dissolved oxygen concentration of 5.0 ppm or outside the range limited in the present invention, since oxygen adsorbed on the adsorbent was dissolved in the inert liquid.

The above encapsulated organic EL device was evaluated for encapsulating effects in the same manner as in Example 3(4). Table 3 shows the results.

Table 3

| | No-light emission area ratio (%) | | | Diameter of dark spot (μm) | | |
|---|----------------------------------|--------------|---------------|---|--------------|---------------|
| | Initial | After 5 days | After 30 days | Initial | After 5 days | After 30 days |
| Ex. 3 | 0.20 | 0.20 | 0.25 | 15 | 15 | 17 |
| Ex. 4 | 0.20 | 0.20 | 0.25 | 15 | 15 | 17 |
| Ex. 5 | 0.20 | 0.20 | 0.25 | 15 | 15 | 17 |
| REx. 1 | 0.20 | 0.25 | 12 | 15 | 17 | 80 |
| CEx. 4 | 0.20 | 4.0 | 50 | 15 | 50 | 300 |
| CEx. 5 | 0.20 | 4.0 | 50 | 15 | 50 | 300 |
| Ex. = Example, REx. = Referential Example, CEx. = Comparative Example | | | | | | |

shown in Table 3, in the encapsulated organic EL devices obtained in Examples 3 to 5, the increase of the no-light emission area ratio with the passage of time and the growth of dark spots with the passage of time were firmly prevented.

On the other hand, in the encapsulated organic EL device obtained in Referential Example 1, the increase of the no-light emission area ratio with the passage of time and the growth of dark spots with the passage of time were firmly prevented as compared with the data of the encapsulated organic EL devices obtained in Comparative Examples 4 and 5, while the encapsulating effects were low as compared with the data of the encapsulated organic EL devices obtained in Examples 3 to 5.

Further, in the encapsulated organic EL device obtained in Comparative Example 4, the no-light emission area ratio immensely increased with the passage of time and dark spots immensely grew with the passage of time, and the encapsulating effects were low. In Comparative Example 5 in which the adsorbent was exposed to atmosphere and then used without activation treatment, to form the inert liquid layer having a dissolved oxygen concentration of 5.0 ppm, the no-light emission area ratio immensely increased with the passage of time, and dark spots immensely grew with the passage of time, similarly to the encapsulated organic EL device obtained in Comparative Example 4, and no effect of the use of the adsorbent was found.

As explained above, the method of the present invention can firmly prevent the growth of dark spots in an organic EL device. The working of the present invention therefore can provide organic EL devices having an increased device life.

Claims

1. A method of encapsulating for an organic EL device, which comprises providing a layer of an inert liquid having a

dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less on the periphery of an organic EL device formed by laminating an anode and a cathode through at least a light-emitting layer.

2. The method of claim 1, wherein the method uses, as an inert liquid, an inert liquid having a water content of 10 ppm or less.

3. The method of claim 1, wherein the method uses, as an inert liquid, a liquid fluorinated carbon having a vapor pressure of 10^{-2} Torr or less at 25°C.

4. The method of claim 1, wherein the layer of an inert liquid is formed by providing a housing material, which is to cover the organic EL device formed on a substrate in combination with the substrate while forming a space between the organic EL device and the housing material, outside the organic EL device, and filling the inert liquid having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less in the space formed by the above substrate and the above housing material.

5. The method of claim 1, wherein the method uses, as an inert liquid, an inert liquid containing an adsorbent.

6. The method of claim 5, wherein the method uses, as an adsorbent,

(1) an inorganic compound selected from activated alumina, diatomaceous earth, activated carbon, hemihydrated gypsum, phosphorus pentoxide, magnesium perchlorate, potassium hydroxide, calcium sulfate, calcium bromide, calcium oxide, zinc chloride, zinc bromide or anhydrous copper sulfate,

(2) a metal selected from the metal group consisting of lithium, beryllium, potassium, sodium, magnesium, rubidium, strontium and calcium,

(3) an alloy of metals selected from the above metal group,

or

(4) an acrylic water-absorption polymer or a methacrylic water-absorption polymer.

7. The method of claim 5, wherein the method uses, as an adsorbent, an adsorbent which is activation-treated.

8. The method of claim 5, wherein the inert liquid contains 1 mg to 10 g of the adsorbent per milliliter of the inert liquid.

9. The method of claim 5, wherein the method uses, as an inert liquid, an inert liquid having a water content of 10 ppm or less.

10. The method of claim 5, wherein the method uses, as an inert liquid, a liquid fluorinated carbon having a vapor pressure of 10^{-2} Torr or less at 25°C.

11. The method of claim 5, wherein the layer of the inert liquid containing the adsorbent is formed by providing a housing material, which is to cover the organic EL device formed on a substrate in combination with the substrate while forming a space between the organic EL device and the housing material, outside the organic EL device, and filling the inert liquid in the space formed by the above substrate and the above housing material.

12. An encapsulated organic EL device having an organic EL device and a layer of an inert liquid which is provided on the periphery of the organic EL device, the layer of the inert liquid having a dissolved oxygen concentration of 1 ppm or less.

13. The encapsulated organic EL device of claim 12, wherein the inert liquid has a water content of 10 ppm or less.

14. The encapsulated organic EL device of claim 12, wherein the inert liquid is a liquid fluorinated carbon having a vapor pressure of 10^{-2} Torr or less at 25°C.

15. The encapsulated organic EL device of claim 12, wherein the layer of the inert liquid is formed of an inert liquid containing an adsorbent.

16. The encapsulated organic EL device of claim 15, wherein the adsorbent is

(1) an inorganic compound selected from activated alumina, diatomaceous earth, activated carbon, hemihydrated gypsum, phosphorus pentoxide, magnesium perchlorate, potassium hydroxide, calcium sulfate, calcium

bromide, calcium oxide, zinc chloride, zinc bromide or anhydrous copper sulfate,

(2) a metal selected from the metal group consisting of lithium, beryllium, potassium, sodium, magnesium, rubidium, strontium and calcium,

(3) an alloy of metals selected from the above metal group,

or

(4) an acrylic water-absorption polymer or a methacrylic water-absorption polymer.

17. The encapsulated organic EL device of claim 15, wherein the adsorbent is an activation-treated adsorbent.

18. The encapsulated organic EL device of claim 15, wherein the inert liquid 1 mg to 10 g of the adsorbent per milliliter of the inert liquid.

19. The encapsulated organic EL device of claim 12, wherein the organic EL device is formed on a substrate, a housing material, which is to cover the organic EL device in combination with the substrate while forming a space between the organic EL device and the housing material, is provided outside the organic EL device, and the layer of the inert liquid is formed in the space formed by the substrate and the housing material.

Fig. 1

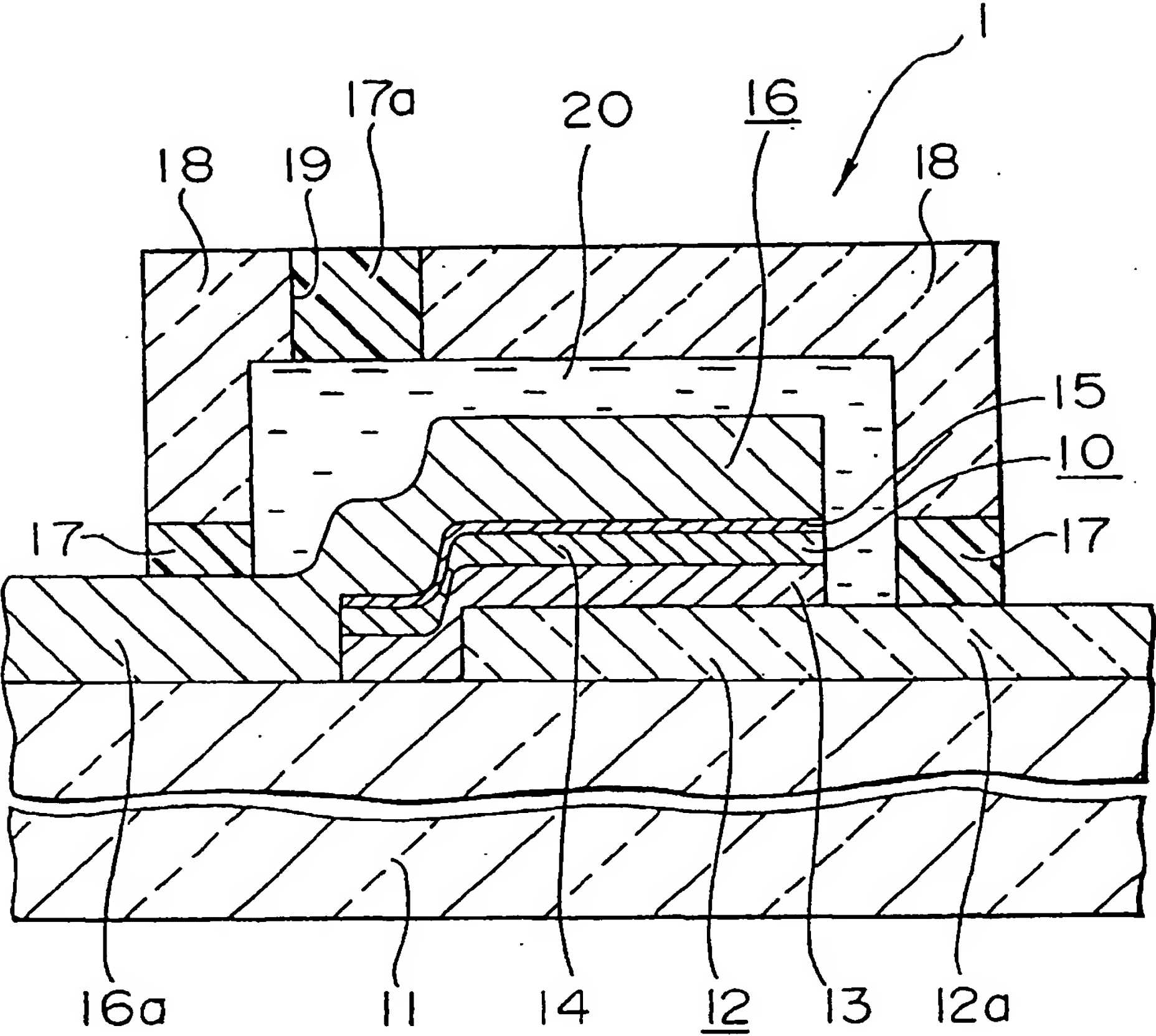
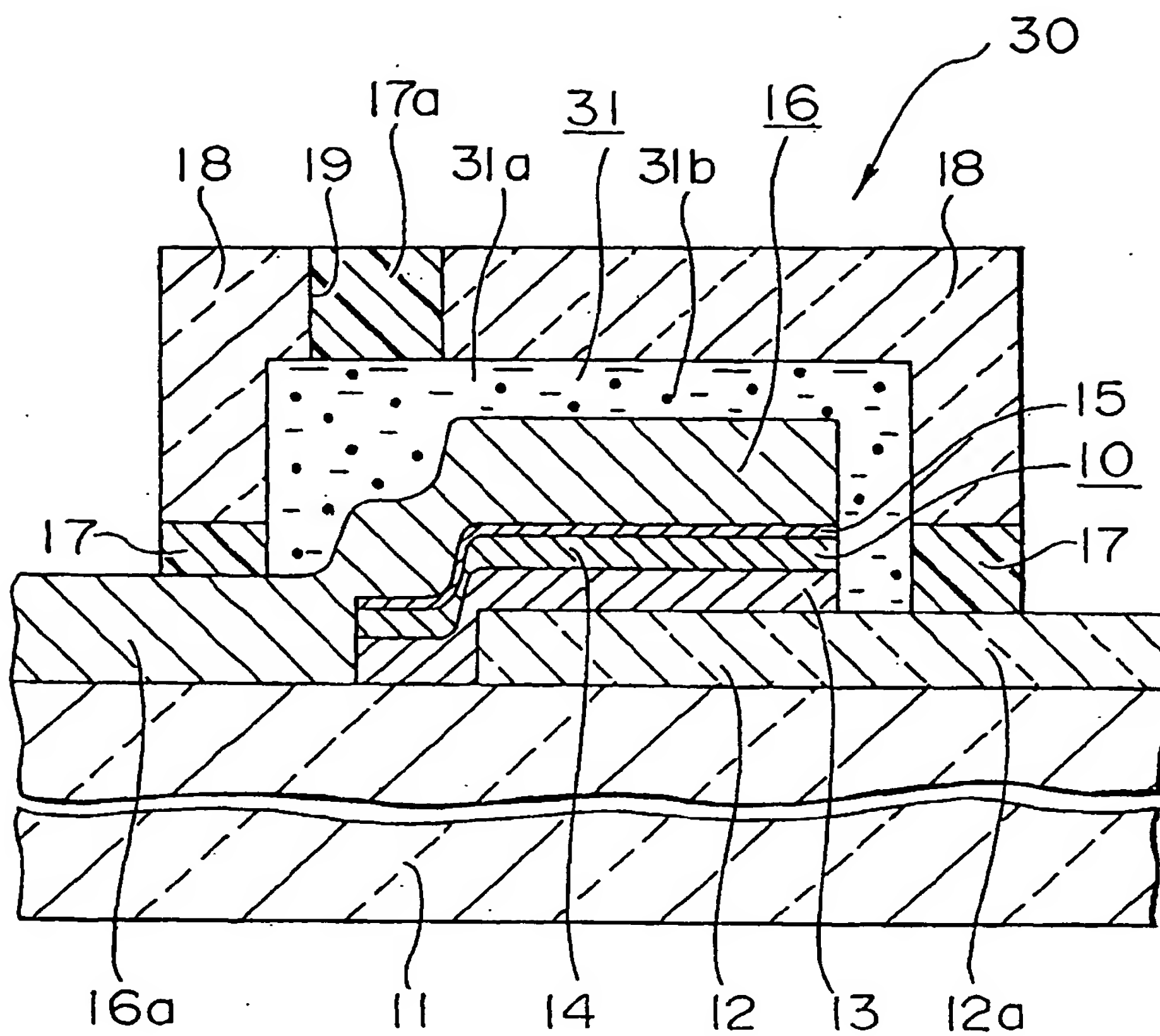


Fig. 2



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP95/01764

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. C16 H05B33/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. C16 H05B33/04, 33/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

| | |
|----------------------------|-------------|
| Jitsuyo Shinan Koho | 1926 - 1995 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971 - 1995 |
| Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994 - 1995 |

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|--------------------------------------|
| Y | JP, 5-129080, A (Konica Corp.), May 25, 1993 (25. 05. 93), Columns 1, 2, page 2, lines 2 to 16, column 8, page 5 (Family: none) | 1, 4, 5, 6, 11, 12, 15, 16, 19 |
| A | | 2, 3, 7, 8, 9, 13, 17, 18 |
| Y | JP, 5-89961, A (NEC Kansai, Ltd.), April 9, 1993 (09. 04. 93), Lines 2 to 14, column 1, page 2, Fig. 1 (Family: none) | 5, 6, 11, 15, 16 |
| A | | 7, 8, 9, 17, 18 |

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reasons (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

December 5, 1995 (05. 12. 95)

Date of mailing of the international search report

December 12, 1995 (12. 12. 95)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

